

# Wechselwirkung und Zusammenhang der zugrundeliegenden Mechanismen von LIPSS und optischer Pinzette

## Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften

(Dr. rer. nat.)

dem

Fachbereich Chemie

der Philipps-Universität Marburg

vorgelegt von

**Erik Pfeifer**

aus

Haldensleben

Marburg an der Lahn, 2019

Die vorliegende Dissertation wurde von Oktober 2016 bis Mai 2020 an der Philipps-Universität Marburg, Fachbereich Chemie, in der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Dr. Hampp angefertigt.

Hochschulkennziffer: 1180

Eingereicht am: 25.05.2020

Vom Fachbereich Chemie der  
Philipps-Universität Marburg  
als Dissertation angenommen: 02.07.2020

Tag der mündlichen Prüfung: 10.07.2020

Erstgutachter: Prof. Dr. N. Hampp  
Zweitgutachter: Prof. Dr. U. Tallarek

Weitere Mitglieder  
der Prüfungskommission: Prof. Dr. A. Geyer



# Kurzzusammenfassung

Die vorliegende Arbeit untersucht die Zusammenhänge zwischen den Phänomenen der Laser-induzierten periodischen Oberflächenstrukturen (LIPSS) und der optischen Pinzette. Beide Phänomene sind hinreichend literaturbekannt, ihre zugrundeliegenden Mechanismen werden in der Regel aber getrennt voneinander betrachtet. Hier präsentierte Ergebnisse lassen vermuten, dass LIPSS und optische Pinzette auf demselben Mechanismus beruhen, bzw. LIPSS das Produkt eines optischen Pinzetten-Effekts auf einer Oberfläche sind.

Um eine Aussage über den Zusammenhang und die Wechselwirkung zwischen LIPSS-Bildung und optischer Pinzette treffen zu können, werden beide Phänomene zunächst getrennt voneinander betrachtet. Neben den literaturbekannten LIPSS wird auch eine weitere Oberflächenstruktur, die Single Gold Wires (SGW), vorgestellt, welche mutmaßlich durch das Einwirken eines optischen Pinzetten-Effekts auf eine Oberfläche entstehen. Diese neuartigen SGW werden hinsichtlich ihrer Entstehungsparameter und Eigenschaften untersucht und ihr Entstehungsmechanismus diskutiert. Außerdem werden weitere Übergangsstrukturen, welche durch eine gegenseitige Beeinflussung von LIPSS- und SGW-Bildung entstehen, vorgestellt und ebenfalls hinsichtlich ihres Entstehungsmechanismus diskutiert. In einem abschließenden Abschnitt werden die zugrundeliegenden Mechanismen für die Entstehung von LIPSS und SGW miteinander verglichen. Dabei wird diskutiert, welche Kräfte an der Entstehung dieser Strukturen beteiligt sind und ob LIPSS und SGW das Ergebnis eines gemeinsamen oder zweier voneinander verschiedenen Mechanismus/Mechanismen sind.



# Abstract

The present work investigates the relation between the phenomena of laser-induced periodic surface structures (LIPSS) and optical tweezer. Both phenomena are well known in the literature, their fundamental mechanisms however are usually examined separate from each other. Results presented here indicate that LIPSS and optical tweezer are based on the same mechanism, respectively LIPSS are a product of an optical tweezer effect acting on a surface.

To make a statement about the relation and interactions between LIPSS formation and optical tweezer, both phenomena are initially examined separately from each other. Alongside the literature known LIPSS another surface structure is studied, the single gold wires (SGW), which are presumably generated by an optical tweezer acting on a surface. The novel SGW are investigated with regard to their formation parameters and characteristics as well as their mechanism of origin. Furthermore, additional transition structures originating from a mutual interference of LIPSS and SGW formation are presented and investigated with regards to their mechanism of origin. A final chapter compares the underlying mechanisms of LIPSS and SGW. Therefore, the forces, which are involved in the formation of these surface structures, are discussed as well as the issue of whether LIPSS and SGW are the result of one and the same mechanism or originate from two different mechanisms.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	Laser-induzierte periodische Oberflächenstrukturen (LIPSS) . . .	3
2.1.1	Entdeckung und erste Erklärungsversuche . . . . .	3
2.1.2	Oberflächenplasmonpolaritonen (SPP) und Feedback-Prozesse	8
2.1.3	Eigenschaften und Anwendungen . . . . .	12
2.2	Optische Manipulation . . . . .	17
2.2.1	Entdeckung und erste Experimente . . . . .	17
2.2.2	Optische Pinzette . . . . .	20
2.2.3	Einsatzgebiete und Stand der Forschung . . . . .	23
2.2.4	Photophorese und Thermophorese . . . . .	26
<b>3</b>	<b>Experimentalteil</b>	<b>31</b>
3.1	Materialien und Chemikalien . . . . .	31
3.2	Geräte und Analysemethoden . . . . .	32
3.2.1	Verwendetes Lasersystem . . . . .	32
3.2.2	Rasterelektronenmikroskopie . . . . .	36
3.2.3	Rasterkraftmikroskopie . . . . .	37
<b>4</b>	<b>Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>39</b>
4.1	Laser-induzierte periodische Oberflächenstrukturen (LIPSS) . . .	41
4.1.1	LIPSS-Erzeugung . . . . .	41

4.1.2	Änderung der LIPSS-Orientierung durch Polarisationskontrolle . . . . .	48
4.2	Single Gold Wires (SGW) . . . . .	57
4.2.1	SGW-Erzeugung . . . . .	57
4.2.2	SGW-Eigenschaften . . . . .	68
4.3	Zusammenhang zwischen LIPSS-Mechanismus und optischer Pinzette	79
4.3.1	Leichte Beeinflussung der LIPSS-Bildung durch eine optische Pinzette . . . . .	79
4.3.2	Starke Beeinflussung der LIPSS-Bildung durch eine optische Pinzette . . . . .	80
4.3.3	Grenzstrukturen aus LIPSS, SGW, A-LIPSS und R-LIPSS	85
4.3.4	Optical binding force als Bindeglied zwischen LIPSS und optischer Pinzette . . . . .	87
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>91</b>
<b>6</b>	<b>Anhang</b>	<b>95</b>
<b>7</b>	<b>Literatur</b>	<b>121</b>

# 1 Einleitung

Der Laser stellt eine Schlüsseltechnologie für den modernen Fortschritt dar. Mit der Entwicklung des Lasers im Jahr 1960<sup>[1]</sup> eröffneten sich neue Möglichkeiten sowohl für die Forschung, als auch für dessen Anwendung im alltäglichen Leben. In Form eines Laserpointers, Laserdruckers oder zum Auslesen von optischen Speichermedien ist der Laser in jedem Haushalt angekommen. Diesen herkömmlichen Anwendungsmöglichkeiten verwenden in der Regel intensitätsschwächere Dauerstrichlaser (engl.: continuous wave laser, CW-Laser). Intensitätsstärkere gepulste Laser können beispielsweise für eine gezielte Materialbearbeitung bzw. -abtrag eingesetzt werden. Das Laserskalpell oder die Korrektur einer Fehlsichtigkeit durch eine „Laserbehandlung“ in der Medizin, sowie das Laserschneiden<sup>[2]</sup> oder diverse Laserlithographiemethoden<sup>[3]</sup> in der Fertigungstechnik sind Beispiele hierfür. Durch seine kohärente Strahlung eignet sich der Laser weiterhin zur präzisen Entfernungsmessung oder Oberflächenanalyse (Laserscanning).<sup>[4]</sup>

Auch in der Forschung werden für die Materialbearbeitung oder -analyse sowohl CW- als auch gepulste Laser eingesetzt. Vor allem für die Oberflächenstrukturierung und -funktionalisierung im Mikro- und Nanometerbereich finden Laser Verwendung. Durch eine Laserstrukturierung ist es beispielsweise möglich, die Rauigkeit von Materialien stark zu erhöhen und so superhydrophobe Oberflächen zu generieren.<sup>[5]</sup> Ein Beispiel für eine solche Oberflächenstrukturierung stellen Laser-induzierte periodische Oberflächenstrukturen (LIPSS) dar.<sup>[6]</sup> Diese wellenförmig auf der Oberfläche verlaufenden parallelen Linien entstehen durch Wech-

## 1 Einleitung

selwirkungen gebeugter und gestreuter Strahlen an Oberflächenrauigkeiten. Die Interferenzen dieser elektromagnetischen Wellen erzeugen ein elektromagnetisches Feld mit periodischem Intensitätsverlauf parallel zur Oberfläche. Eine daraus hervorgerufene inhomogene Energieabsorption knapp unterhalb der Oberfläche führt letztlich zu einer periodischen Beschädigung des Materials.<sup>[7]</sup>

Ein weiteres Beispiel für die Anwendung eines Lasers zur Materialmanipulation und -analyse stellt die Methode der optischen Falle bzw. optische Pinzette dar.<sup>[8]</sup> Mit Hilfe der hohen elektrischen Feldstärke eines Lasers, insbesondere im Strahlfokus, ist es möglich einzelne Partikel und gar Atome einzufangen und zu manipulieren. Die optische Pinzette basiert auf dem Prinzip des Strahlungsdrucks, dem Impulsübertrag von Photonen auf Materie. Ein oder mehrere Teilchen werden im Strahlfokus, dem Bereich der höchsten elektrischen Feldstärke, eingefangen und dort stabil gehalten.<sup>[9]</sup> Eingefangene Teilchen können entweder durch den Fokus eines zweiten Laserstrahls oder durch Veränderung der Strahleigenschaften (Polarisation, Verschieben des Fokus, etc.) bewegt oder rotiert werden.

In der Literatur werden LIPSS und optische Pinzette strikt getrennt voneinander betrachtet. Dies liegt grundsätzlich daran, dass beim Mechanismus der LIPSS die Strukturierung von Oberflächen betrachtet wird, wohingegen die optische Pinzette üblicherweise die Manipulation von Teilchen in Gasen oder Lösungen bezeichnet. Dennoch gibt es Hinweise darauf, dass Zusammenhänge zwischen den Mechanismen beider Phänomene existieren. In dieser Arbeit werden die zugrundeliegenden Mechanismen der LIPSS und der optischen Pinzette miteinander verglichen und versucht, Zusammenhänge und Unterschiede zwischen beiden offenzulegen.

## **2 Theoretische Grundlagen**

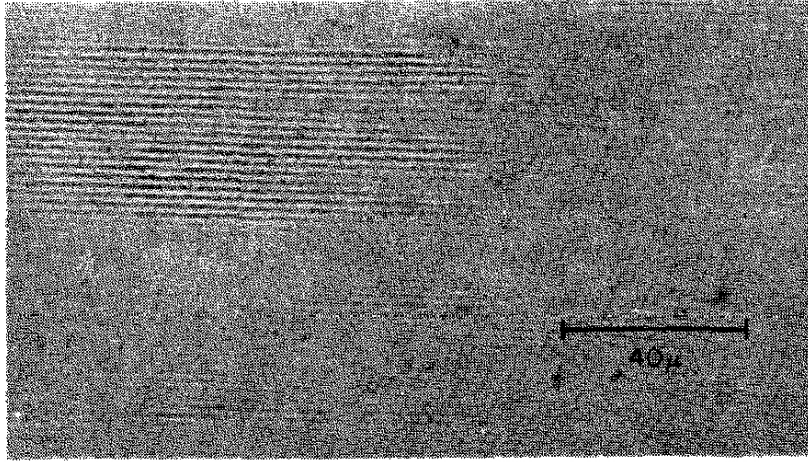
### **2.1 Laser-induzierte periodische Oberflächenstrukturen (LIPSS)**

Treffen hochenergetische Laserpulse auf eine feste Oberfläche, können sich periodische Oberflächenstrukturen ausbilden, welche in der Literatur als LIPSS (laser-induced periodic surface structures) bekannt sind. Nach heutigem Verständnis wirkt der einfallende Laserpuls als ein Stimulus, der einen Selbstorganisationseffekt auslöst. Die angeregte Oberfläche geht dadurch in einen energetischen Übergangszustand über, welcher daraufhin in den energetisch günstigeren Zustand der LIPSS zerfällt.

#### **2.1.1 Entdeckung und erste Erklärungsversuche**

Die Erfolgsgeschichte der LIPSS beginnt im Jahr 1965, als M. Birnbaum<sup>[6]</sup> eine kristalline Germaniumoberfläche mit einem Rubinlaser beschießt und im Nachhinein periodische Muster auf der Probe bemerkt (siehe Abbildung 2.1).





**Abb. 2.1:** Periodische Muster auf einer Germaniumoberfläche nach der Bestrahlung mit einem Rubinlaser. Entnommen aus [6] (Originalbild).

Seine Entdeckung nannte er zunächst „grooves“, was das wellenartige Muster der LIPSS beschreibt. Für die Entstehung dieser Strukturen machte er Interferenzen zwischen dem einfallenden und von der Oberfläche reflektierten Laserlicht verantwortlich. Auch die Abhängigkeit zwischen einfallenden Wellenlänge und Periodizität, sowie einen Zusammenhang zwischen Orientierung der LIPSS und verwendeter Laserpolarisation konnte Birnbaum bereits dokumentieren. Als Schlussfolgerung seiner Beobachtungen formulierte er die erste Gleichung 2.1 zur Berechnung der Periodizität  $\Lambda$ :

$$\Lambda = 2\lambda \left( \frac{f_L}{a_{1/2}} \right)^2 \quad (2.1)$$

$\lambda$  = Wellenlänge des Lasers

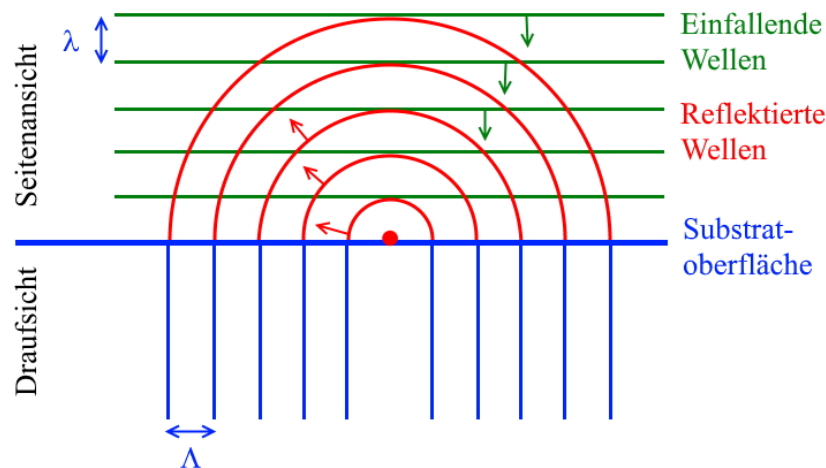
$f_L$  = Brennweite der Fokussierlinse

$a_{1/2}$  = Halbe numerische Apertur

Die erhaltenen Ergebnisse dieser Gleichung waren noch ungenau und vernachlässigten unter anderem die Materialart oder die Polarisation des Lasers. Birnbaum postulierte weiterhin, dass die Berge und Täler der LIPSS ein Produkt der Mi-

nima und Maxima des elektrischen Feldes auf der Substratoberfläche seien. Aus Bereichen mit hohen elektrischen Feldstärken finde ein Materialtransport hin zu geringeren elektrischen Feldern statt, so das Postulat.

In den Folgejahren gewannen Laser und damit auch die Erzeugung von LIPSS immer mehr an Popularität. Bisher mangelte es jedoch noch an einer fundierten Erklärung für die Entstehung von LIPSS. Den ersten Erklärungsversuch lieferten Emmony *et al.* im Jahr 1973<sup>[10]</sup> mit der surface scattered wave-Theorie. Ähnlich wie Birnbaum macht auch Emmony eine Interferenz der einfallenden und reflektierten Strahlen für die Bildung von LIPSS verantwortlich. Hierbei wird das einfallende Licht an Oberflächendefekten reflektiert und interferiert mit einfallendem Licht (siehe Abbildung 2.2).



**Abb. 2.2:** Schematische Darstellung der LIPSS-Bildung nach der surface scattered wave-Theorie von Emmony. Einfallende Lichtwellen der Wellenlänge  $\lambda$  werden an einem Streuzentrum auf der Oberfläche reflektiert und interferieren mit einfallenden Wellen. Auf der Substratoberfläche bilden sich LIPSS mit der Periodizität  $\Lambda$ . Entnommen aus [10] (bearbeitet).

Je nach Einfallswinkel werden dabei unterschiedliche Periodizitäten erhalten. Die aus diesen Erkenntnissen aufgestellte Gleichung 2.2 zur Berechnung der LIPSS-Periodizität ist für bestimmte LIPSS auch heute noch gültig.

$$\Lambda = \frac{\lambda}{1 \pm \sin \theta} \quad (2.2)$$

$\theta = \text{Einfallswinkel des Lichts}$

Die Periodizität sogenannter Low Spatial Frequency LIPSS (LSFL), wie sie beispielsweise bei der Verwendung von Nanosekundenlasern entstehen, können mit Hilfe dieser Gleichung gut vorausgesagt werden. Außer Acht gelassen wird aber die Materialart und Oberflächenbeschaffenheit des belasteten Substrats.

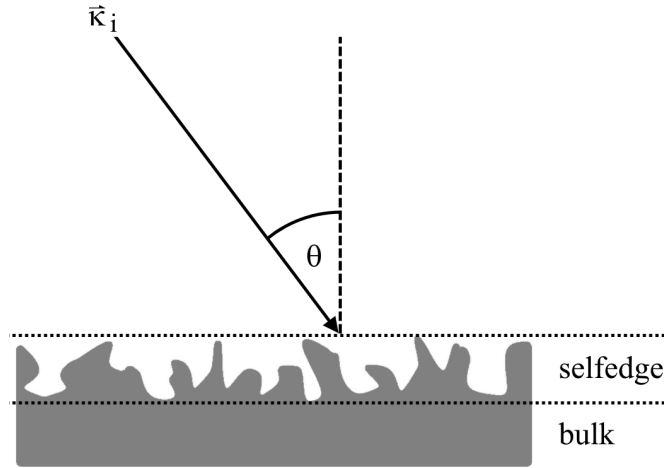
Anfang der 1980er Jahre entwickelten die Physiker Keilmann und Bai<sup>[11]</sup> sowie Sipe *et al.*<sup>[7, 12, 13]</sup> eine neue, erweiterte Theorie zur Entstehung der LIPSS, die efficacy factor-Theorie. Dieser zufolge sind LIPSS ein Ergebnis der Interferenz gebrochener und gestreuter Wellen an einer mikroskopisch rauen Oberfläche. Eine daraus resultierende inhomogene Energieabsorption direkt unterhalb der Oberfläche führt zu einer Zerstörung dieser und zur Entstehung von LIPSS. Um die Rauigkeit einer Oberfläche exakt zu beschreiben, war es nötig diese im Fourier-Raum zu betrachten. Sipe definierte in diesem Sinne eine selfedge-Region  $l_{\text{self}}$ , mit  $l_{\text{self}} \ll \lambda$ , als mikroskopisch kleinen Bereich der Oberflächenrauigkeit. Unter diesen Voraussetzungen war es Sipe möglich, die Wechselwirkungen zwischen gebrochenen und gestreuten Wellen in der selfedge-Region zu beschreiben. Die parallel zur Oberfläche verlaufende Komponente des Wellenvektors  $k_i$  wird an der rauen Oberfläche gestreut, wodurch Streuvektoren  $k_{\pm}$  erzeugt werden (Gleichung 2.3).

$$k_{\pm} = k_i \pm k \quad (2.3)$$

$k = \text{Fourier-Komponente der Oberflächenrauigkeit}$

Durch Interferenz dieser Streuvektoren  $k_{\pm}$  mit gebrochenen Wellen  $k_i$  führt zu einer inhomogenen Energieverteilung direkt unterhalb der selfedge-Region. Der weiter-

hin von Sipe eingeführte efficacy factor  $\eta(k, k_i)|b(k)|$  beschreibt die Wirksamkeit, mit der eine Oberflächenrauigkeit mit der Amplitude  $b(k)$  zu einer inhomogenen Energieabsorption am Ort  $k$  unterhalb der selfedge-Region führt. Interessanterweise, weist  $\eta(k, k_i)|b(k)|$  scharfe, sich in periodischen Abständen wiederholende, Maxima auf. Diese Maxima treten an Stellen auf, an denen  $|k_i \pm k|$  gleich dem Wellenvektor  $\tilde{\omega}$  (mit  $\tilde{\omega} = 2\pi/\lambda$ ) oder einem Vielfachen des Wellenvektors ist. An den Positionen dieser Maxima des elektrischen Feldes kommt es zu periodischen Beschädigungen der Oberfläche und zur Entstehung von LIPSS. Abbildung 2.3 zeigt eine schematische Darstellung der von Sipe entwickelten efficacy factor-Theorie.



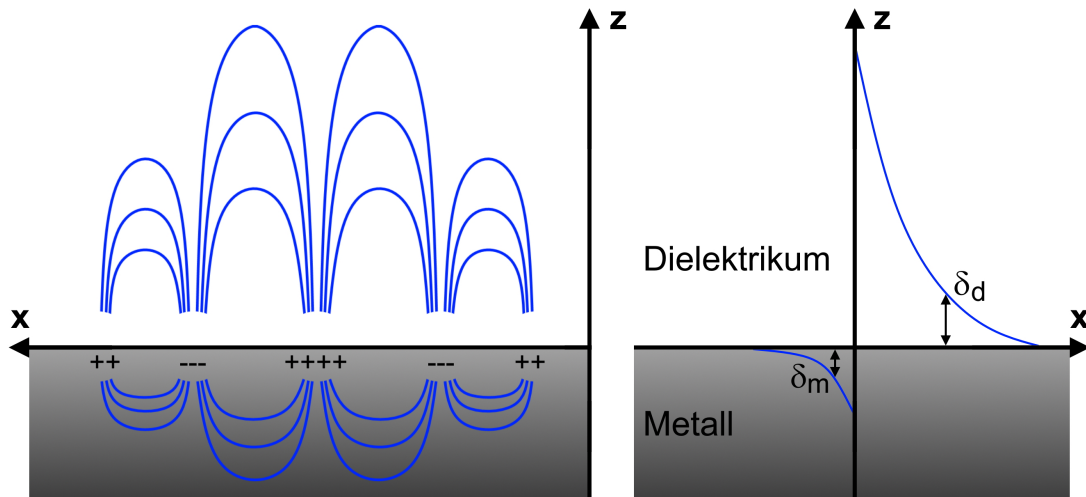
**Abb. 2.3:** Schematische Darstellung der LIPSS-Bildung nach der efficacy factor-Theorie von Sipe. Entnommen aus [7] (bearbeitet).

Zusätzlich zu den bereits von Emmony beachteten Faktoren des Einfallswinkels und der Wellenlänge des Lichts, bezieht Sipe auch die Polarisierung des Lichts und Probeneigenschaften wie die Oberflächenrauigkeit und die dielektrische Permittivität ein. Erstmals wird auch ein potentieller Einfluss der Oberflächenplasmonpolaritonen (engl.: surface plasmon polaritons, SPP) für die Entstehung von LIPSS in Betracht gezogen (siehe Abschnitt 2.1.2). Auch wenn mit dieser Theorie nicht alle LIPSS beschrieben werden können, ist sie die gängigste Theorie zur Beschreibung von LIPSS und ihrer Entstehung.

Die efficacy factor-Theorie wurde in den darauffolgenden Jahren mit dem Drude-Modell<sup>[14]</sup> kombiniert, um die Änderung der dielektrischen Permittivität zu Beginn der LIPSS-Bildung beschreiben zu können. Mit Hilfe des Sipe-Drude-Modells<sup>[15]</sup> war es möglich, die Entstehung von LIPSS auf Halbleitern unter der Verwendung von ultrakurzen Laserpulsen zu erklären. Eine weitere Verbesserung des Sipe-Drude-Modells wurde von Skolski *et al.*<sup>[16]</sup> durch finite-difference time-domain-Berechnungen (FDTD) getätigt. Diese Berechnungen bestätigten zum einen die Richtigkeit des Sipe-Drude-Modells und ermöglichten zum anderen Rückschlüsse auf Feedback-Mechanismen und plasmonische Effekte.<sup>[17, 18]</sup> Einen guten Überblick über den historischen Verlauf rund um LIPSS bietet der Review-Artikel von Bonse *et al.*<sup>[19]</sup>

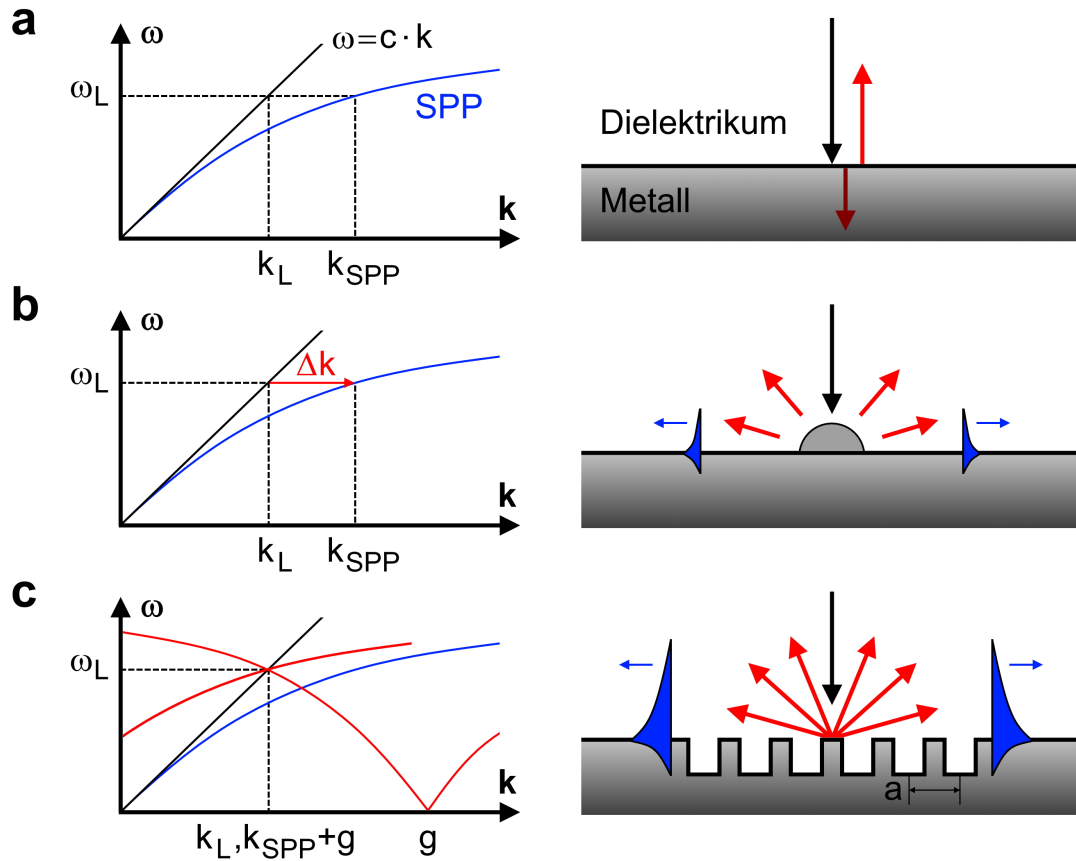
### 2.1.2 Oberflächenplasmonpolaritonen (SPP) und Feedback-Prozesse

Oberflächenplasmonen entstehen, wenn die Elektronen eines Metalls durch elektromagnetische Felder zu Schwingungen angeregt werden. Die dadurch entstehende Oberflächenwelle aus höherer und niedrigerer Elektronendichte verläuft an der Grenzschicht zwischen Metall und Dielektrikum.<sup>[20]</sup> Als Oberflächenplasmonpolaritonen (SPP) werden die Quasiteilchen als Produkt dieser Wellen und Photonen bezeichnet.<sup>[21]</sup> SPP breiten sich aufgrund der optischen Dichte unterschiedlich weit in Metall und Dielektrikum aus. Abbildung 2.4 zeigt die unterschiedliche Ausbreitung und Eindringtiefe  $\delta$  von SPP in Metall und Dielektrikum.



**Abb. 2.4:** Feldlinien der SPP als evaneszente Wellen an der Grenzschicht Metall/Dielektrikum (links) sowie die z- und x-Komponente des elektrischen Feldes der SPP (rechts) mit markierten Eindringtiefen  $\delta$  der SPP in Metall und Dielektrikum. in Metall ( $\delta_m$ ) und Dielektrikum ( $\delta_d$ ).

Aufgrund der unterschiedlichen Phasengeschwindigkeit von Licht und SPP ist es nur unter bestimmten Voraussetzungen möglich, SPP direkt optisch anzuregen.<sup>[22]</sup> Dargestellt werden kann dies durch die Dispersionsrelation, die die Abhängigkeit der Kreisfrequenz  $\omega$  von der Wellenzahl  $k$  beschreibt. Bei gegebener  $\omega$  ist die Wellenzahl der SPP  $k_{\text{SPP}}$  immer kleiner als die des Lichts  $k_L$ . Abbildung 2.5 stellt die Dispersionsrelationen von SPP und Licht.



**Abb. 2.5:** Dispersionsrelationen von Licht und SPP bei unterschiedlichen Oberflächenbeschaffenheiten.

- a) Keine Anregung von SPP auf einer ideal glatten Oberfläche möglich, da sich die Dispersionsrelationen von Licht und SPP nicht schneiden.
- b) Anregung von SPP durch phase matching. Die Bildung von Streuvektoren an einer Oberflächenrauigkeit und Überwindung der Impulsdifferenz  $\Delta k$ .
- c) Anregung von SPP durch grating coupling. Die Wellenlänge der SPP  $\lambda_{SPP}$  entspricht der Periodizität des Gitters  $a$ .

Auf einer ideal glatten Oberfläche (Abbildung 2.5) können keine SPP angeregt werden, da sich die Dispersionsrelationen von Licht und SPP nicht schneiden. Um SPP optisch anregen zu können, muss ein Impulsunterschied  $\Delta k$  aufgebracht werden (Abbildung 2.5). Dies wird auch als phase-matching bezeichnet.<sup>[23]</sup> Durch eine Lichtstreuung an Rauigkeiten auf der Oberfläche werden Streuvektoren erzeugt, die ebendiesen Impulsunterschied kompensieren und dadurch SPP anregen können. Auch Gitter sind in der Lage SPP anzuregen. Damit es zu einem sogenannten

grating coupling kommt, müssen die Periodizität des Gitters  $a$  sowie der Einfallswinkel  $\theta$  folgende Bedingung erfüllen:

$$k_{SPP} = k \sin \theta \pm n_i \cdot g \quad (2.4)$$

$$g = 2\pi/a = \text{reziproker Gittervektor}$$

$$n_i = \text{Beugungsordnung}$$

Bei senkrecht einfallendem Licht ( $\theta = 0$ ) bedeutet dies, dass der reziproke Gittervektor  $g$  gleich dem Impulsvektor von SPP  $k_{SPP}$ , bzw. einem Vielfachen von diesem entsprechen muss. Das bedeutet weiterhin, dass auch die Gitterkonstante  $a$  der Wellenlänge der SPP  $\lambda_{SPP}$  entspricht.

Die zunächst von Sipe für die LIPSS-Bildung in Betracht gezogenen SPP, stellen sich somit als entscheidender Faktor für die Entstehung von LIPSS heraus. Bereits beim efficacy factor  $\eta(k, k_i)|b(k)|$  stellte Sipe fest, dass dieser periodische Maxima aufweist, sofern  $|k_i \pm k|$  gleich dem Wellenvektor  $\tilde{\omega}$  oder einem Vielfachen des Wellenvektors entspricht. Bei senkrechtem Lichteinfall entspricht dies der Bedingung für ein erfolgreiches grating coupling und somit einer Anregung der SPP. Zusammengefasst kann es bei der Bestrahlung einer rauen Oberfläche zur Anregung von SPP kommen, welche in periodischen Abständen Maxima des elektrischen Feldes erzeugen, wodurch die Oberfläche an diesen Stellen beschädigt wird. Diese ersten entstandenen periodischen Oberflächenschäden erzeugen ein grating coupling, wodurch weitere SPP angeregt werden können und die periodische Zerstörung der Oberfläche fortgeführt wird. LIPSS sind demnach ein sich selbst verstärkendes Phänomen.

In der Theorie von Sipe wird streng genommen jedoch nur der erste Moment der LIPSS-Entstehung betrachtet. Eine fortlaufende Zerstörung der Oberfläche beispielsweise durch nachfolgende Laserpulse wird dabei vernachlässigt. Bei der Einwirkung von Laserpulsen auf Materie kann zwischen Intrapuls- (innerhalb



eines Pulses) und Interpuls-Effekte (zwischen bzw. nach den Pulsen) unterschieden werden. Diese sogenannten Feedback-Prozesse spielen bei der Entstehung und Beschreibung von LIPSS eine wichtige Rolle. Zu den Intrapuls-Effekten gehören unter anderem die Anregung von SEW, vorübergehende Änderung der optischen Eigenschaften<sup>[24]</sup> oder inhomogene Energieabsorption<sup>[25]</sup>. Interpuls-Effekte schließen die Änderung der Topologie<sup>[13, 26]</sup> oder der chemischen Zusammensetzung<sup>[27, 28]</sup> und Selbstorganisationseffekte<sup>[29]</sup> mit ein. Die efficacy factor-Theorie betrachtet streng genommen nur den allerersten Moment der LIPSS-Entstehung und kombiniert dabei Intra- und Interpuls-Effekte zur Beschreibung der LIPSS-Entstehung. Für Nanosekunden-LIPSS ist dies eine durchaus ausreichende Erklärung, da Energieabsorption und Materialabtrag im zeitlich ähnlichen Rahmen stattfinden. Werden jedoch ultrakurze Laserpulse von Femto- oder Pikosekundenlasern betrachtet, ergibt sich eine zeitliche Differenz zwischen diesen beiden Ereignissen. Somit stellt sich die Frage, welchen Anteil ein Selbstorganisationseffekt, ausgelöst durch den Laserpuls als Stimulus, an der Bildung von LIPSS hat. Eine unter LIPSS-Forschern allgemein anerkannte Theorie für die LIPSS-Bildung durch ultrakurze Laserpulse wurde bisher noch nicht formuliert, sodass LIPSS Thema der aktuellen Forschung bleiben.

### 2.1.3 Eigenschaften und Anwendungen

Seit einigen Jahren hat sich der Forschungsschwerpunkt für LIPSS in Richtung der Piko- und Femtosekundenlaser verschoben. Anfang der 2000er Jahre wurden mit Hilfe dieser Laser erstmals sogenannte High Spatial Frequency LIPSS (HSFL) entdeckt.<sup>[30, 31]</sup> Diese besitzen eine deutlich niedrigere Periodizität ( $\Lambda_{\text{HSFL}} < \lambda/2$ ) als die LSFL ( $\Lambda_{\text{LSFL}} \approx \lambda$ ) und weisen auch in ihrer Orientierung meist andere Eigenschaften als die LSFL auf. Reif *et al.*<sup>[29]</sup> postulierten, dass die Entstehung dieser neuartigen LIPSS auf einen Selbstorganisationseffekt der Oberfläche aufgrund induzierter metastabiler Zustände zurückgeht. Ein weiterer Unterschied zwischen LSFL und HSFL liegt in ihrer möglichen Erzeugungsart. Im Gegen-

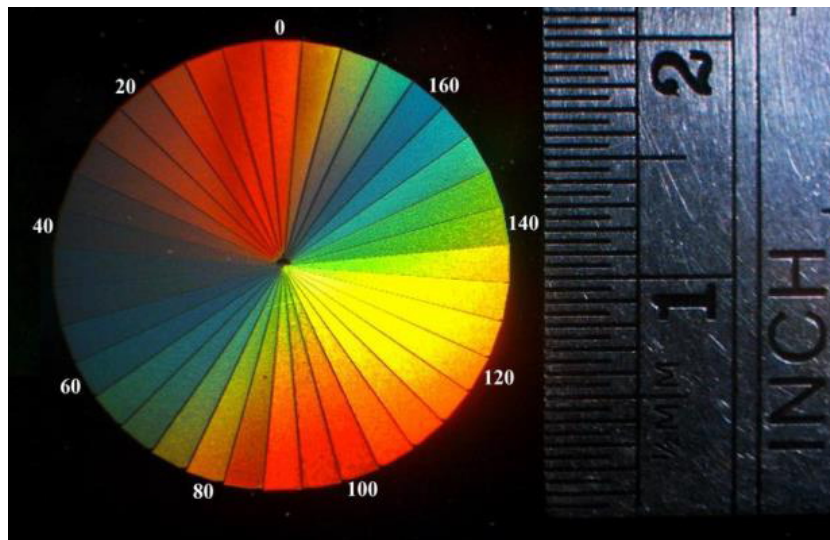
## 2.1 Laser-induzierte periodische Oberflächenstrukturen (LIPSS)

satz zu LSFL konnten HSFL bisher nur mit ultrakurzen Laserpulsen, wie z.B. von Femto- oder Pikosekundenlasern, erzeugt werden.

LSFL bilden sich auf Metallen und Halbleitern in der Regel senkrecht und auf Dielektrika parallel zur Laserpolarisation.<sup>[32–36]</sup> Ihre Bildung kann durch eine Interferenz des eintreffenden Laserstrahls mit auf der Oberfläche gestreuten elektromagnetischen Wellen (engl.: surface-scattered electromagnetic waves, SEW) erklärt werden.<sup>[37, 38]</sup> Bei der Orientierung der HSFL lässt sich keine klare Grenze wie bei den LSFL in Bezug auf den Materialtyp ziehen. Viel mehr kann hier ein Unterschied bei der Tiefe  $t_{\text{HSFL}}$  und Breite  $b_{\text{HSFL}}$  der einzelnen Linien für unterschiedliche Materialien ausgemacht werden. Auf Dielektrika und Halbleitern<sup>[39]</sup> bilden sich hauptsächlich tiefe, schmale HSFL ( $t_{\text{HSFL},1} > \Lambda_{\text{HSFL}}$ ,  $b_{\text{HSFL},1} \ll \Lambda_{\text{HSFL}}$ ), wohingegen sich auf Metallen<sup>[40, 41]</sup> flache HSFL ( $t_{\text{HSFL},2} < \Lambda_{\text{HSFL}}$ ) ausbilden. Die Herkunft dieser LIPSS ist noch unklar, erste Theorien machen Selbstorganisationseffekte, Passivierung oder Zwillingsbildung der geschmolzenen Oberfläche oder den Einfluss von plasmonischen Effekten dafür verantwortlich.

Neben dem akademischen Interesse an LIPSS und ihrer Entstehung gibt es auch durchaus Eigenschaften der LIPSS, die von praktischer Bedeutung sind. Für viele anwendungsbezogene Aspekte ist es von Vorteil, dass LIPSS auf einer Vielzahl von Materialien mit hohen Geschwindigkeiten erzeugt werden können. Eine großflächige Erzeugung von LIPSS<sup>[42–44]</sup> wird üblicherweise durch ein Umlenken des Laserstrahls und Abrastern der Probe mit Rastergeschwindigkeiten im Bereich mehrerer mm/s oder sogar m/s erreicht.<sup>[45]</sup>

Die erfolgreich LIPSS-modifizierten Oberflächen weisen eine Eigenschaft auf, die in Abbildung 2.6 zu sehen ist.



**Abb. 2.6:** LIPSS-modifizierte Messingoberfläche. Die periodische Struktur der LIPSS fungiert als optisches Gitter und erzeugt je nach Ein-/Ausfallswinkel des Lichts unterschiedliche Farben. Bild entnommen aus [46] (Originalbild).

Die periodischen Berge und Täler der LIPSS bilden ein Beugungsgitter, an dem je nach Periodizität der LIPSS und Einfallswinkel des Lichts unterschiedliche Wellenlängen reflektiert werden. Als Resultat erscheinen die LIPSS-modifizierten Oberflächen in unterschiedlichen Farben. Neben der auf der Hand liegenden Farbcodierung von Materialien kann diese Eigenschaft auch für Photovoltaikanlagen interessant sein, da die Oberflächenstrukturierung eine Verringerung der Reflektivität bewirkt.<sup>[47]</sup>

Weitere materialwissenschaftlich besondere Eigenschaften der LIPSS sind die Superhydrophobie und verringerte Haftreibung der strukturierten Oberflächen. Beide Effekte gehen auf die erhöhte Rauigkeit der LIPSS-modifizierten Oberfläche zurück. Vor allem die verringerte Haftreibung von LIPSS-Oberflächen ist für die Entwicklung neuer Mikrobauteile (engl.: micro devices; micro machines)<sup>[48, 49]</sup> von Interesse. Weitere Anwendungsbeispiele von LIPSS sind die Erhöhung der Emission von Feldemissionskathoden<sup>[50]</sup> oder die chemische Modifikation und anschlie-

## 2.1 Laser-induzierte periodische Oberflächenstrukturen (LIPSS)

ßende Verwendung als elektrochemischer Sensor<sup>[51]</sup>. Neben den hier beispielhaft genannten Anwendungen gibt es noch weitere Einsatzmöglichkeiten von LIPSS, die auf ihre erhöhte Oberfläche oder die verbesserten plasmonischen Eigenschaften der LIPSS zurückzuführen sind.<sup>[46, 52]</sup>



## 2.2 Optische Manipulation

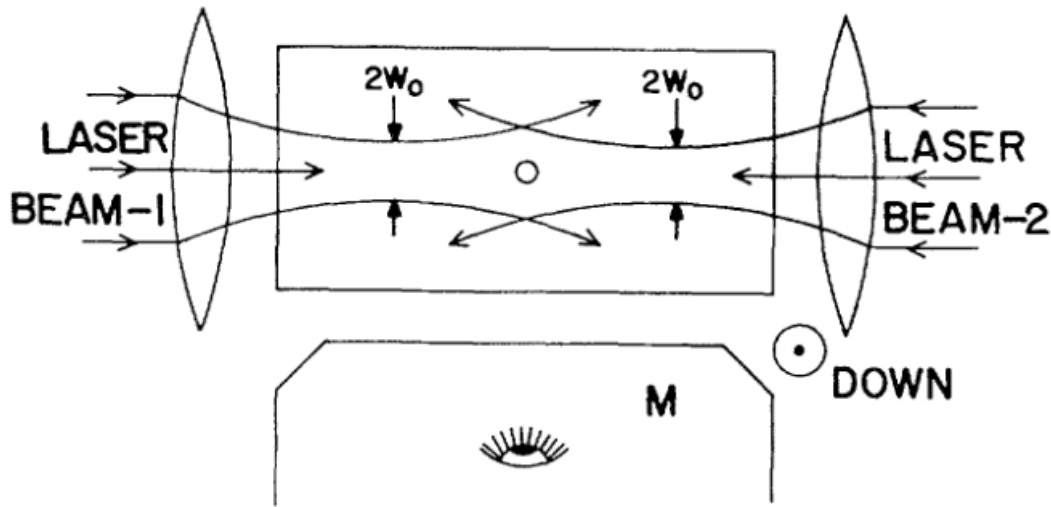
Mit Hilfe der optischen Manipulation ist es möglich kleinste Teilchen zu bewegen und schadenfrei zu untersuchen. Der dabei genutzte Effekt geht auf einen Impulsübertrag der Photonen auf Materie zurück. Beispiele für die optische Manipulation sind die optische Falle und die optische Pinzette. Durch die Fokussierung eines oder mehrerer Laserstrahl(en), wird ein Brennpunkt / werden Brennpunkte mit hoher elektrischer Feldstärke bzw. hoher Photonendichte erzeugt. Befindet sich ein Partikel in der Nähe eines Brennpunktes, kommt es zu einem Impulsübertrag der Photonen auf den Partikel, woraufhin sich der Partikel in Richtung des Brennpunktes bzw. davon weg bewegt. Die durch den Impulsübertrag auf die Partikel ausgeübte Kraft beträgt dabei in der Regel wenige Nano- bis Piconewton.<sup>[9]</sup> Diese geringe Krafteinwirkung ermöglicht es beispielsweise biologische Zellen zerstörungsfrei zu untersuchen, wodurch die optische Pinzette zu einem beliebten Werkzeug in der Biologie und Biochemie geworden ist.

### 2.2.1 Entdeckung und erste Experimente

Bereits 1619 postulierte Johannes Kepler durch die Beobachtung von Kometen eine Kraft, welche er als „Lichtdruck“ bezeichnete. Ihm zufolge wird der von der Sonne weg gerichtete Kometenschweif, bestehend aus kleinen Staubpartikeln, aufgrund dieser Kraft erzeugt.<sup>[53]</sup> Eine erste theoretische Berechnung, der heute als Strahlungsdruck bekannten Kraft, wurde durch James Clerk Maxwell getätigt.<sup>[54]</sup> Die Maxwellschen Gleichungen beschreiben unter anderem die Kraft, die durch den Impulsübertrag von Photonen auf Materie ausgeübt wird. Kurze Zeit später konnte der Strahlungsdruck auch experimentell von Nichols und Hull<sup>[55]</sup>, sowie Lebedev<sup>[56]</sup> nachgewiesen werden. Materie mit der Hilfe von Licht gezielt zu bewegen, wurde das erste Mal im Jahr 1970 von A. Ashkin<sup>[8]</sup> realisiert. Diese besondere Art der optischen Manipulation (OM) ist heute als optische Pinzette (engl.: optical tweezer, OT) oder optische Falle (engl.: optical trap) bekannt und wurde 2018

mit dem Nobelpreis für Physik gewürdigt.

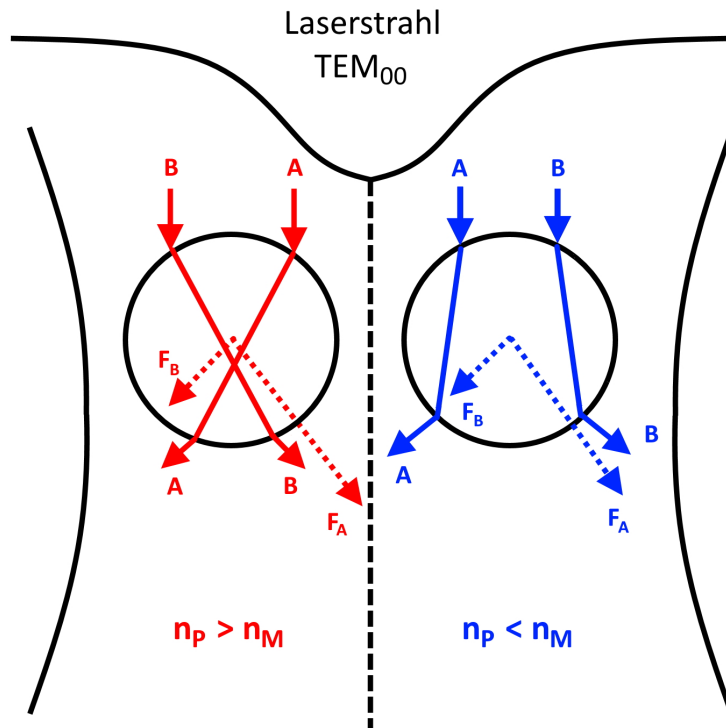
Neben der schon zuvor bekannten vorwärts gerichteten Kraft, genannt Streukraft (engl.: scattering force,  $F_{sc}$ ), konnte Ashkin auch eine transversale, zum Fokuspunkt hin gerichtete Kraft, genannt Gradientenkraft (engl.: gradient force,  $F_{gr}$ ), nachweisen. Mit Hilfe eines zweiten Laserstrahls war es Ashkin möglich, die erste stabile 3-dimensionale optische Falle zu konstruieren. Abbildung 2.7 zeigt schematisch den von Ashkin verwendeten Versuchsaufbau.



**Abb. 2.7:** Schematischer Versuchsaufbau der ersten 3-dimensionalen optischen Pinzette von Ashkin. Der Partikel ist stabil zwischen den Fokuspunkten ( $2W_0$ ) der beiden Laserstrahlen gefangen. Bild entnommen aus [8] (Originalbild).

Schnell wurde klar, dass auch die Gradientenkraft auf dem Strahlungsdruck beruht und Partikel in den Bereich der höchsten elektrischen Feldstärke zieht. Ausschlaggebend für die Richtung des wirkenden Strahlungsdruckes ist weiterhin der Brechungsindex des Partikels  $n_P$  und des umgebenden Mediums  $n_M$ . Ist der Brechungsindex des Partikels höher als der des umgebenden Mediums ( $n_P > n_M$ ), zieht die Gradientenkraft den Partikel in Richtung der Strahlmitte. Im umgekehrten Fall ( $n_P < n_M$ ) wird der Partikel aus der Strahlmitte verdrängt. Wird beispielsweise ein Laserstrahl mit einem  $TEM_{00}$ -Strahlprofil verwendet, ist die Laserintensität im Strahlzentrum höher als am Strahlrand. Ein transparenter Partikel, der

von diesem Strahl getroffen wird, streut das Licht, je nach dem Verhältnis  $n_P:n_M$ , zur Strahlachse hin oder von dieser weg. Entscheidend dabei sind die näher am Strahlzentrum befindlichen Laserstrahlen, da diese eine höhere Intensität besitzen und dadurch einen stärkeren Impuls auf den Partikel übertragen. Abbildung 2.8 verdeutlicht diesen Zusammenhang.



**Abb. 2.8:** Gradientenkraft bei transparenten Partikeln mit unterschiedlichen Brechungsindizes. Die Höhe des Impulsübertrags und somit die Kraft  $F_A$ , resultierend aus dem intensiveren Strahl A, überwiegt die Kraft  $F_B$ , welche vom weniger intensiven Strahl B ausgeht. Ein Partikel mit höherem Brechungsindex als sein umgebendes Medium (rot) wird dadurch in Richtung Strahlmitte gezogen. Ein Partikel mit niedrigerem Brechungsindex als sein umgebendes Medium (blau) wird von der Strahlmitte weggedrückt.

Die Abbildung 2.8 veranschaulicht den Effekt auf transparente Partikel am Beispiel eines  $\text{TEM}_{00}$ -Strahlprofils (Gauß-Profil). Mit Hilfe von Strahlformung (engl.: beam shaping) können auch komplexere Strahlprofile wie z.B. Tophat oder Donut-förmige Profile ( $\text{TEM}_{01}^*$ ) erzeugt werden. Ein  $\text{TEM}_{01}^*$ -Strahlprofil ist beispielsweise in

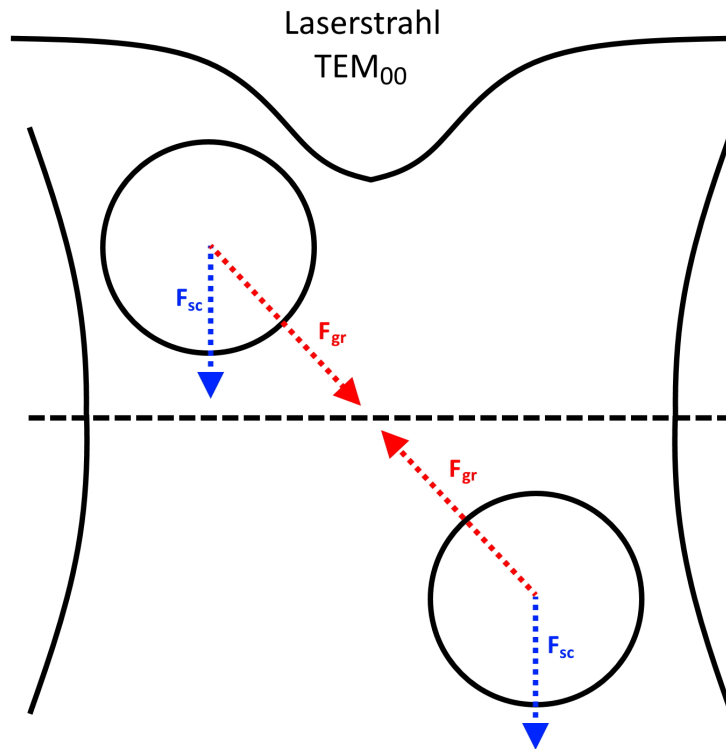


der Lage, Glashohlkugeln in der Strahlmitte zu fangen, da diese gemäß  $n_P < n_M$  (mit P = Luft und M = Glas) aus dem Bereich hoher Strahlungsintensität verdrängt werden.<sup>[57]</sup> Aufgrund der Auslenkung und Streuung des Laserstrahls durch den manipulierten Partikel ist es weiterhin möglich, die schwankende Laserintensität zu messen und als Feedback für die Steuerung der optischen Falle zu nutzen. Eine auf solche Weise Feedback-kontrollierte Laserintensität hält die auf den Partikel wirkende Kraft konstant und stabilisiert somit die optische Falle.<sup>[58, 59]</sup> In darauf folgenden Experimenten konnten die Kräfte des Strahlungsdrucks auch auf die Manipulation von Atomen und Atomstrahlen ausgeweitet werden.<sup>[60, 61]</sup> Vor allem die bereits 1975<sup>[62]</sup> postulierte Laserkühlung (engl.: laser cooling; optical cooling) konnte in den Folgejahren experimentell bewiesen und verbessert werden.<sup>[63–66]</sup> Die Laserkühlung beschreibt eine wichtige Unterart der optischen Manipulation, bei der die Kraft des Impulsübertrags von Photonen auf ein sich bewegendes Atom der Bewegungsrichtung des Atoms entgegengesetzt ist und somit das Atom abbremsen. 1997 wurde die Entwicklung der Laserkühlung mit dem Nobelpreis für Physik geehrt.

### 2.2.2 Optische Pinzette

Einen weiteren technischen Fortschritt im Bereich der optischen Manipulation stellt die Entwicklung der optischen Pinzette (engl.: optical tweezer [trap]) dar. Im Rahmen der Experimente zur Entwicklung der Laserkühlung wurde die erste stabile, 3-dimensionale optische Pinzette entwickelt. Im Gegensatz zur herkömmlichen optischen Falle, benötigt die optische Pinzette nur einen Laserstrahl zum Fixieren des Partikels.<sup>[66]</sup> Bereits 1978 postulierte Ashkin eine optische Pinzette, bei der die Gradientenkraft eines stark fokussierten Gauß-Strahls die Streukraft überwiegt.<sup>[67]</sup> Im Gegensatz zu vorherigen 3-dimensionalen optischen Fallen, welche auch als Schwebefallen (engl.: levitation traps) bezeichnet wurden, ist die Gradientenkraft hier stark genug, um auch der kombinierten Kraft aus Streukraft und Gravitation entgegenzuwirken. Abbildung 2.9 zeigt beispielhaft die wirkende

Gradienten- und Streukraft in dieser 3-dimensionalen optischen Pinzette.



**Abb. 2.9:** Gradienten- und Streukraft einer stabilen, 3-dimensionalen optischen Pinzette. Durch starke Fokussierung des Laserstrahls wird ein elektromagnetisches Feld hoher Intensität im Brennpunkt erzeugt. Die resultierende Gradientenkraft  $F_{gr}$  überwiegt die Streukraft  $F_{sc}$ .

Aufgrund ebendieser stabilisierenden Eigenschaft, wird die Gradientenkraft auch oft als wiederherstellende Kraft (engl.: restoring force) bezeichnet, da sie einen aus dem Fokus verdrängten Partikel wieder in die stabile Trapping-Position zurückholen kann. Ein erfolgreiches Einfangen eines Partikel ist im Grunde ein Gleichgewicht zwischen der Gradienten- und der Streukraft bzw. attraktiven und repulsiven Kräften. Da die Gradientenkraft immer in Richtung der höchsten elektrischen Feldstärke wirkt, ist sie direkt im Fokus des Laserstrahls gleich Null. Dieser Umstand bewirkt, dass Partikel nie direkt im Fokus, sondern immer leicht über oder unter diesem eingefangen werden können.

Mit Hilfe der optischen Pinzette gelang es Svoboda und Block erstmals metallische

Rayleigh-Partikel ( $d \ll \lambda$ ) von wenigen Nanometern Durchmesser  $d$  einzufangen.<sup>[68]</sup> Das Einfangen metallischer Partikel galt zuvor als unmöglich<sup>[59]</sup>, da beim Trapping opaker Partikel, aufgrund ihrer höheren Absorption, eine deutlich stärkere Streukraft hervorgerufen wird. Die höhere Absorption der Partikel führt weiterhin zu einer stärkeren Erhitzung dieser, wodurch biologische Proben oder Nanopartikel zerstört werden können.<sup>[69]</sup> Bemerkenswert war außerdem die geringe Größe der eingefangenen Partikel. Die auf Rayleigh-Partikel wirkende Gradienten- und Streukraft unterscheidet sich maßgeblich von den auf Mie-Partikel ( $d \geq \lambda$ ) ausgeübten Kräfte. Je kleiner der einzufangende Partikel ist, desto kleiner ist auch die auf ihn wirkende Gradientenkraft. Dies hängt mit der Polarisierbarkeit des Partikels zusammen, welche proportional zum Partikelradius  $r$  und der lokalen Laserintensität ist. Für Gradientenkraft  $F_{\text{gr}}$  und Streukraft  $F_{\text{sc}}$  ergeben sich folgende Zusammenhänge<sup>[70]</sup>:

$$F_{\text{gr}} \propto r_1^3 \quad (2.5)$$

$$F_{\text{gr}} \propto r_2^2 \quad (2.6)$$

$$F_{\text{sc}} \propto r^6 \quad (2.7)$$

$r_1 = \text{Partikelradius größer als } 50 \text{ nm}$

$r_2 = \text{Partikelradius kleiner als } 50 \text{ nm}$

Daraus ergibt sich vor allem für Nanopartikel eine deutlich höhere Streukraft als Gradientenkraft, wodurch die optische Pinzette destabilisiert wird und ein Einfangen dieser Partikel ohne eine Verstärkung der Gradientenkraft unmöglich wird. Um die Gradientenkraft zu verstärken gibt es mehrere Möglichkeiten. Neben der Erhöhung der lokalen Laserintensität durch stärkere Laserquellen oder eine stärkere Fokussierung des Laserstrahls, kann auch die Laserwellenlänge einen Einfluss auf das Trapping-Verhalten haben. In den Experimenten von Svoboda und Block beispielsweise, wurde eine Laserwellenlänge verwendet ( $\lambda_{\text{Laser}} = 1047 \text{ nm}$ ), welche

weit weg von der Resonanzwellenlänge des bestrahlten Partikels ( $\lambda_{\text{Partikel}} \approx 515 \text{ nm}$ ) lag. Ein auf diese Weise bestrahlter metallischer Nanopartikel verhält sich wie ein dielektrischer Nanopartikel mit hohem Brechungsindex im Vergleich zum umgebenden Medium<sup>[71]</sup>, was die auf ihn wirkende Gradientenkraft deutlich erhöht. Wird im Gegenteil dazu eine Laserwellenlänge verwendet, welche dicht an der Resonanzwellenlänge des Partikels liegt, erhöht sich zwar ebenfalls die Polarisierbarkeit des Partikels und somit die Gradientenkraft, jedoch auch die Absorption des Partikels und damit die Streukraft, was wiederum die optische Pinzette destabilisiert.<sup>[72]</sup>

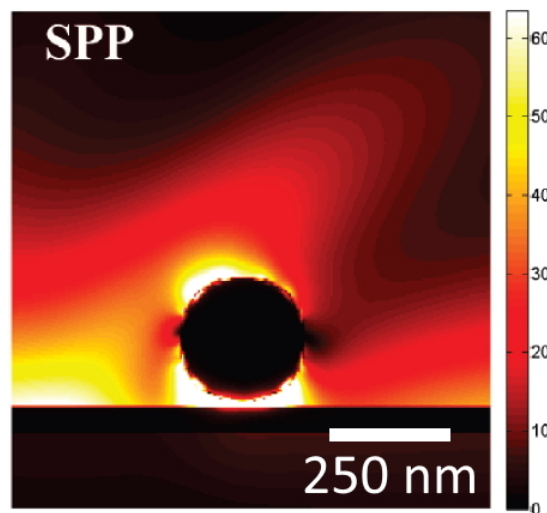
### 2.2.3 Einsatzgebiete und Stand der Forschung

Vor allem in der Biologie und Biochemie hat sich die Manipulation von sensiblen Proben mit Hilfe der optischen Pinzette etabliert.<sup>[73, 74]</sup> Vorteilhaft ist dabei, dass eine optische Manipulation auch in Flüssigkeiten funktioniert und so eine Austrocknung von beispielsweise Zellmaterial verhindert wird. In der Physik und Materialwissenschaft findet die optische Pinzette unter anderem Anwendung zur Analyse von Oberflächen und Oberflächenkräften<sup>[75–77]</sup> oder der Detektion von Schwingungen<sup>[78]</sup>. Einen guten Überblick über die diversen Anwendungsgebiete der optischen Manipulation bietet der Review-Artikel von Gao *et al.*<sup>[79]</sup> Auch heute noch werden in den meisten Lasersystemen für die optische Manipulation Dauerstrichlaser (engl.: continuous wave laser, CW-Laser) in Kombination mit Mikroskopobjektiven zur starken Fokussierung des Laserstrahls verwendet.

Bei der optischen Manipulation mit CW-Lasern zeigte sich, dass die induzierte Hitze durch Absorption des Laserlichts zum Teil eine Zerstörung der Proben zur Folge hatte. Weiterhin gestaltet sich das Einfangen von Nanopartikeln als schwierig, da die hier wirkende Gradientenkraft, im Vergleich zu Mikropartikeln, verringert ist.

Eine Lösung für diese Probleme können gepulste Laser darstellen.<sup>[80]</sup> Aufgrund der kurzzeitig sehr hohen Laserintensität der Laserpulse werden höhere Gradi-

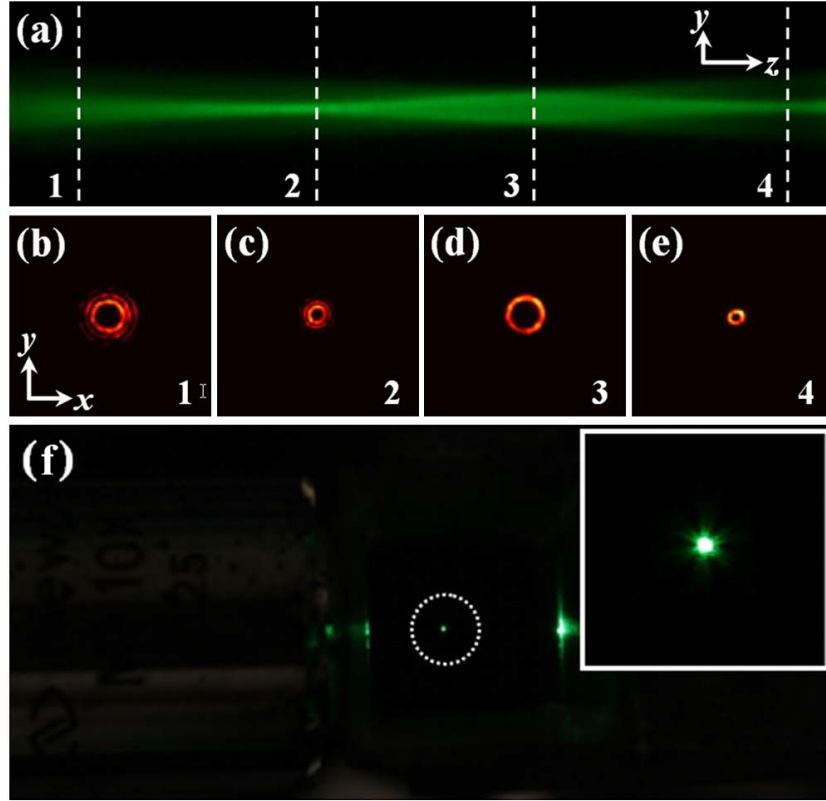
entenkkräfte erzeugt und zudem die thermische Beanspruchung der bestrahlten Partikel durch die Relaxationszeiten zwischen den Pulsen verringert. Ein weiterer Vorteil von gepulsten Lasern ist die verstärkte Generierung von SPP<sup>[81]</sup> und lokalen Oberflächenplasmonen (engl.: localized surface plasmons, LSP)<sup>[82]</sup>, vor allem im Bereich der Resonanzwellenlänge des angeregten Partikels. Diese SPP und LSP erzeugen ein starkes elektrisches Feld um den Partikel, welches wiederum einer erhöhten Gradientenkraft gleich kommt. Beispiele für diese sogenannte Plasmonenverstärkte optische Pinzette (engl.: plasmon enhanced optical tweezer, PE-OT) bieten die Arbeiten von Volpe<sup>[83]</sup> und Wang<sup>[84]</sup>, bei denen eine bis zu 40-fache Verstärkung des Strahlungsdrucks im Vergleich zu einer nicht-PE-OT gemessen wurde. Abbildung 2.10 zeigt das durch SPP verstärkte elektrische Feld um einen Goldpartikel.



**Abb. 2.10:** 3D FDTD-Berechnung des SPP-verstärkten elektrischen Feldes um einen Goldpartikel ( $d = 250$  nm). Bild entnommen aus [84] (bearbeitet).

Neben der Verstärkung der attraktiven Kräfte zur Stabilisierung der optischen Pinzette werden auch Beam Shaping- und Holographiemethoden<sup>[85, 86]</sup> angewandt, um die Strahleigenschaften selbst zu verändern und so die 3-dimensionale Manipulation der eingefangenen Partikel zu verbessern. Mit Hilfe von Bessel-<sup>[87]</sup>, Solenoid-<sup>[88]</sup> oder Airy-Strahlen<sup>[89, 90]</sup> können sogenannte optische Traktorstrahlen

bzw. Vortexstrahlen erzeugt werden, die in der Lage sind eingefangene Partikel heranzuziehen oder abzustößen.<sup>[91, 92]</sup> Abbildung 2.11 zeigt ein Beispiel für einen bottle beam (deutsch: „Flaschenstrahl“), eine Variante des Bessel-Strahls, mit dem einzelne Partikel stabil eingefangen werden können.



**Abb. 2.11:** Beispiel eines bottle beams, einer Variante des Bessel-Strahls, zum Einfangen einzelner Partikel.

**a)** Aufnahme des Intensitätsverlaufs des bottle beams.

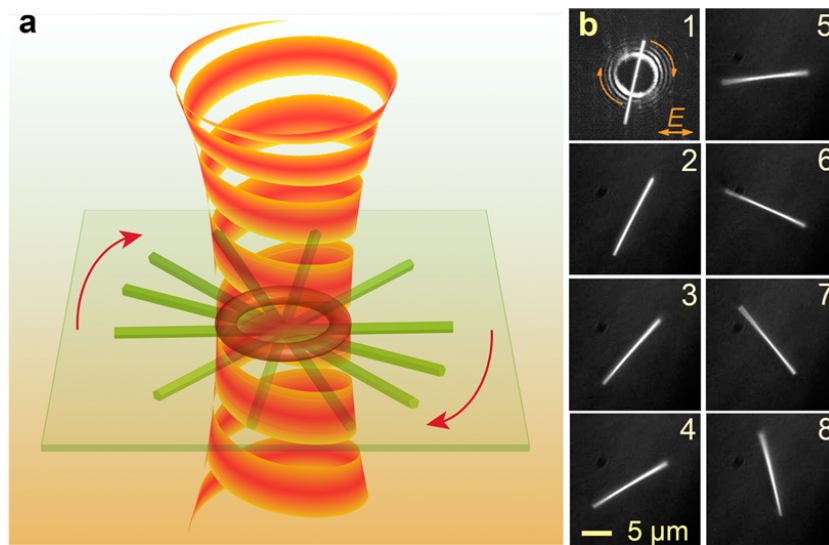
**b-e)** Intensitätsprofil des bottle beams an den in **a)** markierten Positionen.

**f)** Eingefangener Partikel und vergrößerte Darstellung des gefangenen Partikels.

Bilder entnommen aus [93] (Originalbilder, zusammengefügt).

Die Erzeugung dieser Traktorstrahlen wird häufig durch den Einsatz von einem oder mehreren Lichtmodulatoren (engl.: spatial light modulator, SLM) bewerkstelligt, wodurch auch sehr komplexe 3-dimensionale Traktorstrahlen erzeugt werden können.<sup>[94]</sup> Neben der gezielten Deposition einzelner Partikel<sup>[95]</sup> oder selbstorganisierter Partikelanordnungen<sup>[96]</sup> auf einer Oberfläche ist es mit Traktorstrahlen auch möglich mehrere Partikel gleichzeitig einzufangen<sup>[97]</sup>, zu sortieren<sup>[98]</sup> und

zu drehen<sup>[99]</sup>. Abbildung 2.12 zeigt die Anwendung eines Vortex-Strahls zum Einfangen und zur Rotation von Silbernanostäbchen.



**Abb. 2.12:** Anwendung eines Vortex-Strahls zum Einfangen und zur Rotation von Silbernanostäbchen.

a) Schematische Darstellung der Rotation eines Nanostäbchens durch den variierenden Bahndrehimpuls der Photonen des Vortex-Strahls.

b) Mikroskopische Aufnahmen eines rotierenden Nanostäbchens im Vortex-Strahl. Bild entnommen aus [99] (Originalbild).

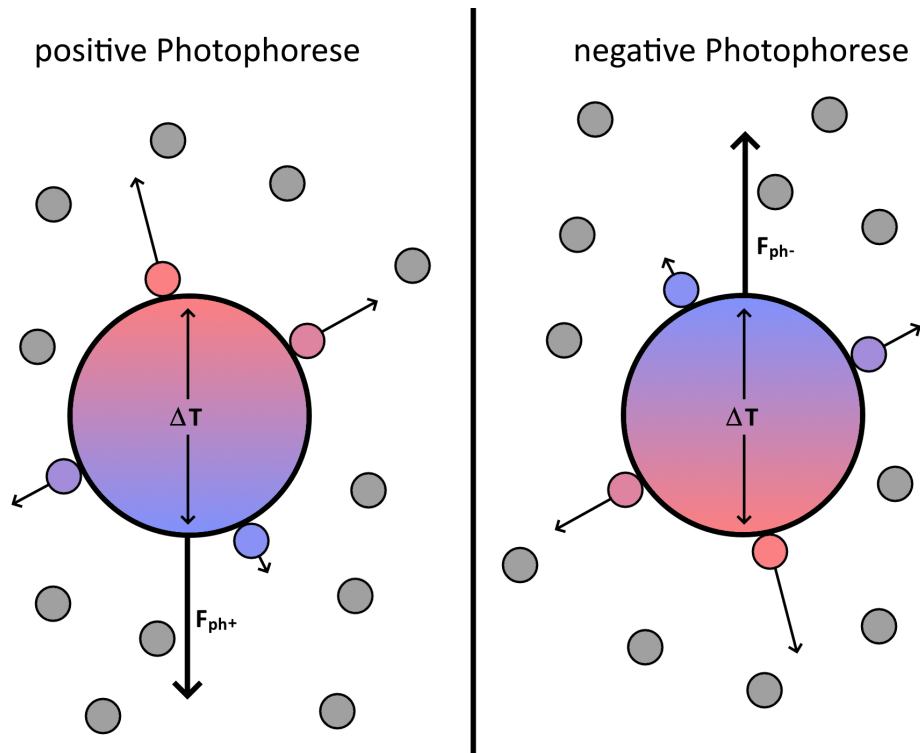
### 2.2.4 Photophorese und Thermophorese

Trifft ein Photon auf Materie kann dieses entweder reflektiert, transmittiert oder absorbiert werden. Bei der Reflexion wird die Energie des Photons hauptsächlich als Impuls an die bestrahlte Materie übertragen. Dies ist beispielsweise bei der optischen Pinzette der Fall. Wird das Photon absorbiert, wird die Energie des Photons an das bestrahlte Material abgegeben und in den meisten Fällen in thermische Energie umgewandelt. Bei der Transmission durchdringt das Photon das Material, wodurch idealerweise kein Impuls- oder Energieübertrag stattfindet.

Da es keine perfekt reflektierenden Materialien gibt, spielt bei der optischen Manipulation auch immer die Absorption eine entscheidende Rolle. Effekte, die auf der Absorption von Photonen basieren und die optische Manipulation beein-

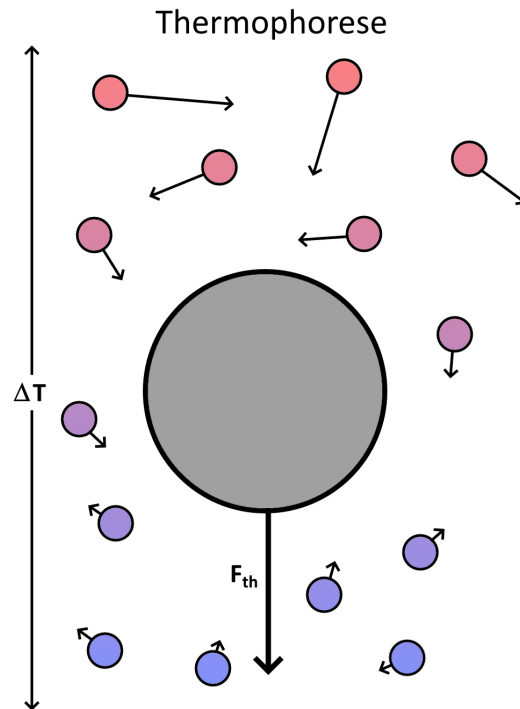
flussen bzw. teilweise sogar als optische Manipulation angesehen werden, sind die Photophorese<sup>[100–103]</sup> und die Thermophorese<sup>[104, 105]</sup>. Wird ein absorbierender Partikel einseitig bestrahlt führt dies zu einer Erwärmung der bestrahlten Seite des Partikels und unter Umständen auch zu einer Erwärmung der Teilchen des umgebenden Mediums. Folglich wird ein Temperaturgradient im Partikel bzw. im umgebendem Medium erzeugt. In beiden Fällen kommt es durch Zusammenstöße der Teilchen des umgebenden Mediums und des bestrahlten Partikels zu einem Impulsübertrag zwischen diesen beiden. Je höher die Temperatur des jeweiligen Partikels/Teilchens ist, desto höher ist auch seine kinetische Energie und damit der Impuls, der bei einem Zusammenstoß übertragen werden kann. Trifft ein Teilchen des Mediums auf die heiße Seite des Partikels, wird folglich ein stärkerer Impuls auf den Partikel übertragen als wenn es auf die kältere Seite des Partikels treffen würde. Dies liegt daran, dass das stoßende Teilchen die lokale Temperatur des Partikels übernimmt. Die dadurch energiereicheren Teilchen übertragen in der Summe einen höheren Impuls auf den Partikel, wodurch sich dieser in Richtung der kälteren Seite bewegt. Befindet sich der Temperaturgradient wie in diesem Fall im Partikel, wird der Effekt als Photophorese bezeichnet. Zusätzlich wird hier noch zwischen der positiven und negativen Photophorese unterschieden. Bei stark absorbierenden Partikeln, wie z.B. metallischen Nanopartikeln oder Staubteilchen<sup>[106]</sup>, kommt es zu einer Erwärmung der bestrahlten Seite des Partikels. Dies führt zu einer Bewegung des Partikels in Ausbreitungsrichtung des Strahls und wird als positive Photophorese bezeichnet. Im Gegensatz dazu kommt es bei transparenten Partikeln, z.B. Glaspartikeln, zu einer sogenannten negativen Photophorese.<sup>[107]</sup> Durch einen optischen Linsen-Effekt<sup>[108]</sup> wird die Rückseite des Partikels erwärmt, wodurch der Partikel entgegengesetzt zur Ausbreitungsrichtung des Strahls wandert. Abbildung 2.13 zeigt schematisch die Unterschiede zwischen der positiven und negativen Photophorese.





**Abb. 2.13:** Schematische Darstellung der positiven und negativen Photophorese. Durch einen Impulsübertrag der Teilchen des umgebenden Mediums auf den Partikel resultiert eine Kraft in Richtung des kälteren Bereichs. Bei der positiven Photophorese erzeugt dies eine Kraft  $F_{ph+}$  in Ausbreitungsrichtung des Strahls und bei der negativen Photophorese eine Kraft  $F_{ph-}$  entgegengesetzt der Ausbreitungsrichtung des Strahls.

Befindet sich der Temperaturgradient im umgebenden Medium wird von der Thermophorese gesprochen. Äquivalent zur Photophorese übertragen auch hier die Teilchen mit höherer kinetischer Energie einen stärkeren Impuls auf den Partikel. Folglich bewegt sich der Partikel in Richtung des kälteren Bereichs. Abbildung 2.14 zeigt schematisch den erzeugten Temperaturgradienten im umgebenden Medium und die daraus resultierende thermophoretische Kraft  $F_{th}$ .



**Abb. 2.14:** Schematische Darstellung der wirkenden thermophoretischen Kraft  $F_{th}$  durch einen Temperaturgradienten im Medium um einen Partikel. Durch einen Impulsübertrag der Teilchen des umgebenden Mediums auf den Partikel resultiert eine Kraft  $F_{th}$ , die in Richtung des kälteren Bereichs wirkt.

Problematisch sind diese thermisch-induzierten Kräfte vor allem bei der optischen Manipulation von metallischen Nanopartikeln. Diese besitzen in der Regel eine hohe Absorption, weshalb die Photophorese oder Thermophorese die Gradientenkraft häufig überwiegt und ein Einfangen dieser Partikel sehr schwierig macht. Wie in den Abschnitten 2.2.2 und 2.2.3 beschrieben, gibt es dennoch Möglichkeiten diese stabil einzufangen. Alternativ gibt es Ansätze von optischen Pinzetten, die auf dem Prinzip der Photophorese<sup>[109]</sup> oder Thermophorese<sup>[110]</sup> funktionieren. Diese werden als photophoretische Falle (engl.: photophoretic trap[ping]), im Fall der Photophorese, oder als thermische Pinzette (engl.: thermal tweezer), im Falle der Thermophorese, bezeichnet.



## 3 Experimentalteil

### 3.1 Materialien und Chemikalien

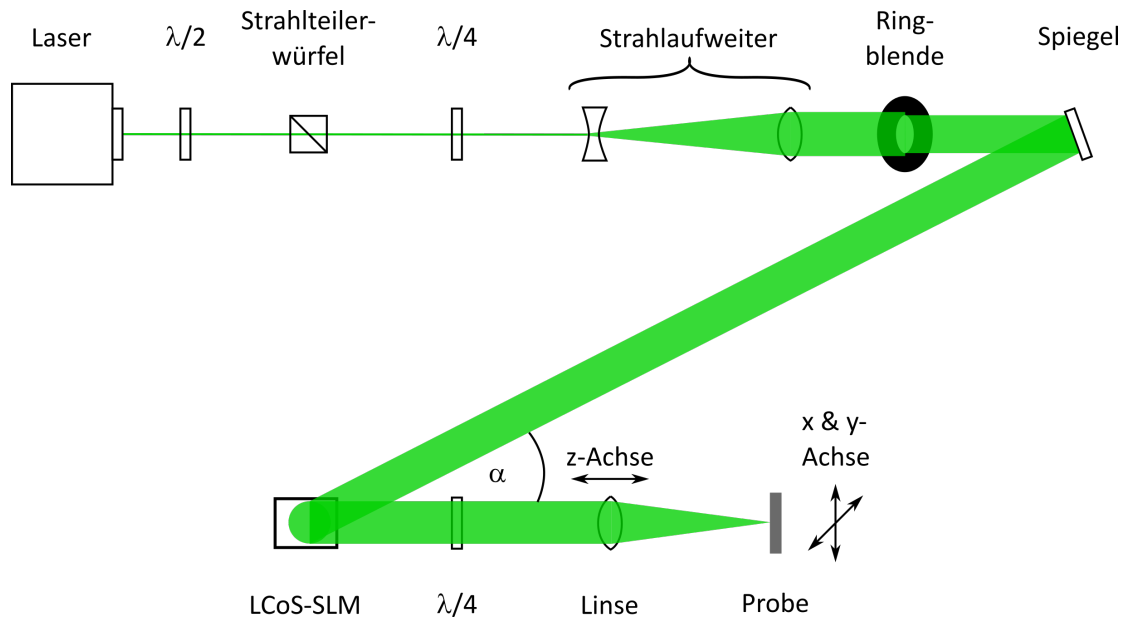
Die hier gezeigten Ergebnisse wurden auf goldbesputterten Siliciumwafern durchgeführt. Zur Beschichtung der Siliciumwafer wurde ein Magnetron-Sputtercoater (auto108) der Firma Cressington (Cressington Scientific Instruments, Watford, England) benutzt. Die Dicke der aufgetragenen Goldschichten betrug im Durchschnitt 3,5 nm. Als Substrat wurden hochohmige, p-dotierte Siliciumwafer ( $\langle 100 \rangle$ ,  $R > 3000 \Omega \cdot \text{cm}$ ,  $d = 350 \mu\text{m}$ , Rückseite geätzt) der Firma Siegert (Siegert Wafer, Aachen, Deutschland) oder niederohmige, n-dotierte Siliciumwafer ( $\langle 111 \rangle$ ,  $R = 0,002 \Omega \cdot \text{cm}$ ,  $d = 625 \mu\text{m}$ , Rückseite geätzt) der Firma Silchem (Silchem, Freiberg, Deutschland) verwendet. Bei der Untersuchung der laserstrukturierten Proben konnten keine Unterschiede der Laserstrukturierung zwischen den beiden Waferarten ausgemacht werden. Im Folgenden wird deshalb allgemein der Begriff Siliciumwafer verwendet.

Ein nasschemisches Ätzen der laserstrukturierten Siliciumwafer wurde mit Königswasser (Salzsäure:Salpetersäure, 3:1) für 2 min vorgenommen, um Verunreinigungen und die nicht-laserstrukturierte Goldschicht abzuwaschen. Nach dem Ätzvorgang wurden die Proben mehrfach mit entionisiertem Wasser abgespült. Bei manchen Proben wurde nach diesem Schritt ein weiterer Ätzschritt mit 1 mmol Flusssäure für 2 min durchgeführt, um die native  $\text{SiO}_2$ -Schicht zu entfernen.

## 3.2 Geräte und Analysemethoden

### 3.2.1 Verwendetes Lasersystem

Für die Erzeugung der in dieser Arbeit vorgestellten laserstrukturierten Oberflächen wurde das in Abb. 3.1 gezeigte Lasersystem verwendet.



**Abb. 3.1:** Schematische Darstellung des verwendeten Lasersystems.

Die Energie eines frequenzverdoppelten diodengepumpten Nd:YVO<sub>4</sub> Festkörperlaser (engl.: diode pumped solid state laser, DPSS) (Explorer XP 532-5, Newport, USA) wird mit Hilfe eines  $\lambda/2$ -Plättchens und eines polarisierenden Strahlteilerwürfels reguliert. Der Laser besitzt eine Wellenlänge von 532 nm und emittiert Pulse mit einer Pulsdauer von 6 ns mit Repetitionsraten  $f$  zwischen 50 kHz und 300 kHz. Mit Hilfe eines galileischen Strahlaufweiters, bestehend aus einer konkaven Linse ( $f_{L1} = -50$  mm) und einer konvexen Linse ( $f_{L2} = +150$  mm), wird der Strahl auf das Dreifache aufgeweitet. Um unscharfe Ränder des aufgeweiteten Laserstrahls aufgrund von Streustrahlung zu eliminieren, ist hinter dem Strahlaufweiter eine Ringblende eingesetzt. Diese sorgt zudem für die Einstellung des Strahldurchmessers  $d$ , welcher durch den nachfolgenden Lichtmodulator

(engl.: spatial light modulator, SLM) auf eine maximale Größe von 12 mm begrenzt ist. Für alle Experimente wurde deshalb ein Strahldurchmesser (auf dem SLM) von 10 mm gewählt. Der hier verwendete reflektierende phase-only Liquid Crystal on Silicon-SLM (LCoS-SLM, deutsch: Flüssigkristalle auf [einem] Silicium[substrat]) (X10468, Hamamatsu Photonics GmbH, Herrsching am Ammersee, Deutschland) besitzt eine Displaygröße von 15,8 mm x 12,0 mm (800 px x 600 px). Jedes einzelne Pixel besteht aus einer Reihe doppelbrechender Flüssigkristalle, welche einzeln elektrisch angesteuert werden können. Durch Darstellung eines 256 Bit Graustufenbildes auf dem SLM-Display kann die an den Pixeln angelegte Spannung reguliert werden. Je nach Höhe der angelegten Spannung drehen sich die Flüssigkristalle eines Pixels und sind dadurch in der Lage eine Phasenmodulation des Lichts zu erzeugen. Der Öffnungswinkel  $\alpha$  des reflektierenden SLM wurde auf  $10^\circ$  eingestellt, um Verzerrungen im reflektierten Bild zu vermeiden. Da der verwendete SLM lediglich eine Phasenverzögerung erzeugt, jedoch keine wie hier benötigte Polarisationsänderung erzeugen kann, wurden zusätzlich zwei  $\lambda/4$ -Plättchen im Strahlengang vor und hinter dem SLM eingebaut. Das erste  $\lambda/4$ -Plättchen dreht den linear polarisierten Laserstrahl und erzeugt eine zirkulare Polarisation. Der SLM ist nur in der Lage den horizontalen Anteil des Lichts zu drehen und erzeugt somit, je nach Ansteuerung der einzelnen Pixel, einen elliptisch polarisierten Strahl. Das  $\lambda/4$ -Plättchen hinter dem SLM dreht den elliptisch polarisierten Laserstrahl wieder zurück in eine lineare Polarisation. Eine Fokussierungslinse ( $f_{L3} = 25$  mm,  $NA = 0.23$ ) ist an der z-Achse des Nanopositioniertisches befestigt und bündelt den modulierten Laserstrahl auf die Probenoberfläche. Die Probe selbst kann mit Hilfe eines Nanopositioniertisches (Aerotech ANT130-110-XY-MP-ULTRA, NT95-25-L-Z-PLUS, Aerotech GmbH, Nürnberg, Deutschland) in der Ebene auf 1 nm genau bewegt werden.

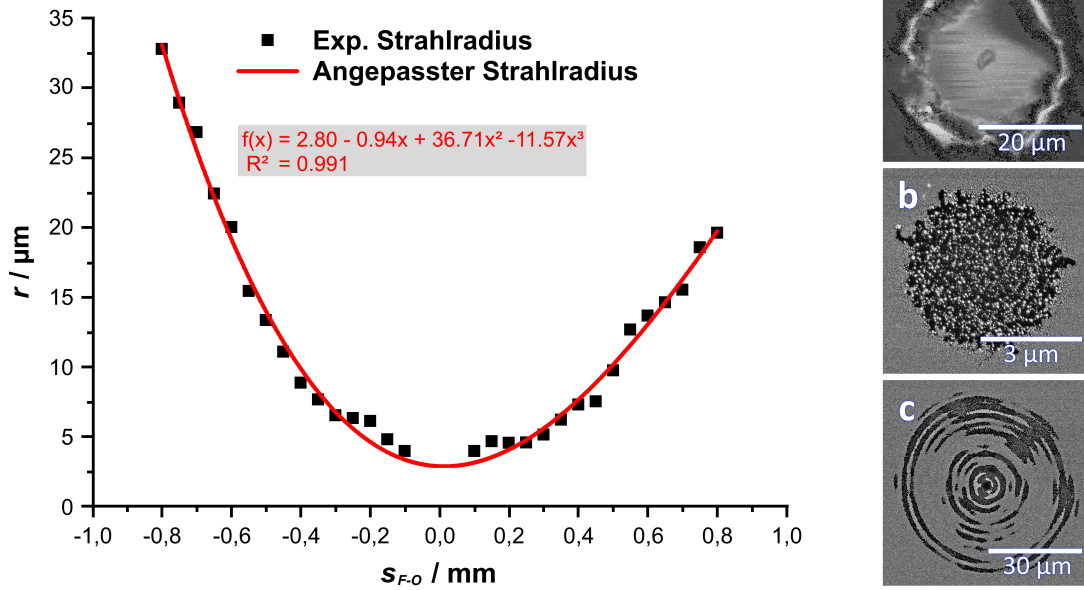
#### Laserparameter

Aufgrund des relativ langen Strahlenganges, sowie der Strahlaufweitung, Beschneidung und anschließenden Modulation des Laserstrahls kommt es zu Energieverlusten. Die Pulsenergie  $E_p$  auf der Probenoberfläche wurde mit Hilfe eines thermischen Leistungsmessers (FieldMax II mit LM 80 V Detektorkopf, Coherent Inc., USA) bestimmt. Die maximal gemessene Leistung  $P$  bei einer Repetitionsrate  $f$  von 100 kHz beträgt 2,72 W, was nach Gleichung 3.1

$$E_p = \frac{P}{f} \quad (3.1)$$

einer Pulsenergie  $E_p$  von 27  $\mu\text{J}$  entspricht. Die maximal erreichbare  $E_p$  kann bei einer  $f$  von 50 kHz erhalten werden. Die Leistung bei voller Auskopplung beträgt hier 2,21 W, was einer  $E_p$  von 44  $\mu\text{J}$  entspricht.

Durch die bewegliche Fokussierungslinse, welche an der z-Achse des Positionierendes befestigt ist, ist es möglich den Strahldurchmesser auf der Probenoberfläche sehr genau zu steuern. Der effektive Strahldurchmesser  $d$  bei unterschiedlichen Abständen zwischen Probenoberfläche und Fokussierungslinse wurde durch die Bestrahlung von goldbesputterten Siliciumwafern bestimmt. Hierfür wurde eine  $f$  von 50 kHz und unterschiedliche  $E_p$  verwendet, um den kleinst möglichen Schaden auf der Probenoberfläche zu erzielen. Die Bestrahlungszeit betrug bei diesen Experimenten 1 ms. Die belasteten Proben wurden anschließend mit einem Elektronenrastermikroskop (engl.: Scanning electron microscope, SEM) untersucht. Abbildung 3.2 zeigt die aus den SEM-Bildern erhaltenen Strahlradien  $r$  in Abhängigkeit des Abstands zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$ . Als Fokus wurde der Abstand gewählt, bei dem ein Oberflächenschaden auch bei geringst möglicher  $E_p$  noch zu erkennen war. Ein  $s_{F-O}$  von 0,00 mm bedeutet, dass der Fokus direkt auf der Probenoberfläche liegt. Bei negativen  $s_{F-O}$  liegt der Fokus unter der Probenoberfläche, bei positiven  $s_{F-O}$  darüber.



**Abb. 3.2:** Auftragung des Abstands zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$  gegen den gemessenen Strahlradius  $r$ . Die rote Linie zeigt den gefitteten Verlauf der gemessenen Strahlradien. Beispielbilder zeigen den erzeugten Oberflächenschaden bei unterschiedlichen  $s_{F-O}$ .

- a) Oberflächenschaden bei  $s_{F-O} = 0.70$  mm.
- b) Oberflächenschaden bei  $s_{F-O} = 0.00$  mm (Fokus).
- c) Oberflächenschaden bei  $s_{F-O} = -0.75$  mm.

Da eine Beschädigung der Oberfläche in diesem Fall durch thermische Effekte hervorgerufen wurde, ist der gemessene Strahldurchmesser  $d$  nicht gleich dem  $1/e^2$  ( $\hat{=}$  transversalem Intensitätsabfall eines Lasers mit Gauß-Profil auf ca. 13,5%). Der tatsächliche  $1/e^2$  des Laserstrahls liegt wahrscheinlich leicht über den hier angegebenen Strahldurchmessern. Eine qualitative Beschreibung der beobachteten Oberflächenstrukturen und Effekte, wie sie diese Arbeit bietet, ist dennoch möglich.



### 3 Experimentaltteil

Anhand dieser Strahldurchmesser konnten nach Gleichungen 3.2 und 3.3 die Spotfläche  $A$  und die Pulsfluenzen  $F_p$  bestimmt werden.

$$A = \pi r^2 \quad (3.2)$$

$$F_p = \frac{E_p}{A} \quad (3.3)$$

Sofern nicht anders angegeben betrug die verwendete Schreibgeschwindigkeit bzw. Bewegungsgeschwindigkeit  $v$  des Nanopositioniertisches 1 mm/s. Mit Hilfe des Strahlradius  $r$  und der Repetitionsrate  $f$  kann die Pulsüberlappung  $N_p$  berechnet werden (Gleichung 3.4).

$$N_p = \frac{f \cdot 2r}{v} \quad (3.4)$$

Da  $r$  mit dem Abstand zwischen Fokus und Probenoberfläche variiert, ergibt sich für jede mögliche Kombination aus  $r$  und  $f$  eine andere Pulsüberlappung.

Eine Auflistung bzw. Darstellung aller gemessenen Laserleistungen  $P$  (Tabelle 6.1 bzw. Abbildung 6.1) sowie der berechneten Spotflächen  $A$  (Tabelle 6.2) und Pulsüberlappungen  $N_p$  (Tabelle 6.3) befindet sich im Anhang.

#### 3.2.2 Rasterelektronenmikroskopie

Rasterelektronenmikroskopische Bilder wurden mit drei unterschiedlichen Elektronenmikroskopen aufgenommen. Übersichtsbilder mit geringen Vergrößerungen wurden größtenteils mit einem Vega 3 (Tescan GmbH, Dortmund, Deutschland)

aufgenommen. Hochauflösende elektronenmikroskopische Bilder wurden entweder mit einem JSM-7500F oder einem JIB-4610F von Jeol (Jeol GmbH, Freising, Deutschland) aufgenommen. Jedes dieser Mikroskope besitzt einen Detektor, mit dem Sekundärelektronen (engl.: secondary electrons, SE) und Rückstreuelektronen (engl.: backscattered electrons, BSE) detektiert werden können und somit Topologie (2D) und Materialunterschiede der untersuchten Probe sichtbar gemacht werden können. In den Bildern des BSE-Detektors erscheinen Elemente mit höheren Atommassen (z.B. Gold) heller, wohingegen Elemente geringerer Atommasse (z.B. Silicium) dunkler erscheinen.

### 3.2.3 Rasterkraftmikroskopie

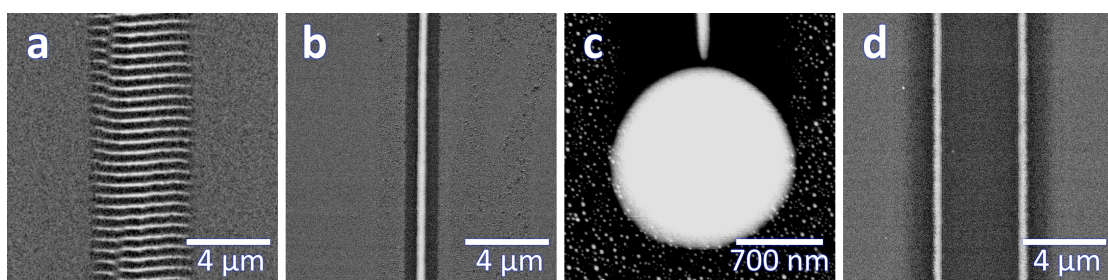
AFM-Messungen (engl.: atomic force microscopy) wurden mit einem Nanoscope V (Bruker, USA) durchgeführt. Für Messungen im Tapping-Modus wurde eine n-dotierte Silicium-Spitze (RTESP14,  $f_{\text{tip}} = 235 - 304 \text{ kHz}$ ,  $k_{\text{tip}} = 20 - 80 \text{ N/m}$ ) von Veeco Instruments verwendet. Messungen im Kontaktmodus wurden mit einer Siliciumnitrid-Spitze (SNL-10,  $f_{\text{tip}} = 56 - 75 \text{ kHz}$ ,  $k_{\text{tip}} = 0,12 - 0,48 \text{ N/m}$ ) von Bruker durchgeführt.



## 4 Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel sollen zunächst die individuellen Phänomene LIPSS (Abschnitt 4.1) und SGW (Abschnitt 4.2) genauer beleuchtet werden. Im abschließenden Abschnitt 4.3 werden beide Phänomene hinsichtlich ihres Entstehungsmechanismus und ihrer gegenseitigen Beeinflussung miteinander verglichen. Abbildung 4.1 zeigt eine Übersicht der in den folgenden Abschnitten vorgestellten Ergebnisse.

Zusätzlich zu den bereits literaturbekannten LIPSS (Abbildung 4.1a, siehe Abschnitt 4.1), werden auch neuartige SGW (Abbildung 4.1b, siehe Abschnitt 4.2) genauer beschrieben. Weitere interessante Effekte bei der Bildung der SGW, wie beispielsweise die Entstehung einer Goldansammlung (Abbildung 4.1c), werden im Abschnitt 4.2.2 vorgestellt. Eine Diskussion der Übergangsstrukturen, die eine Beeinflussung zwischen LIPSS und optischer Pinzette zeigen (Abbildung 4.1d), findet im abschließenden Abschnitt 4.3 statt.



**Abb. 4.1:** Übersicht der erhaltenen Ergebnisse.

- a) LIPSS.
- b) SGW.
- c) Goldansammlung einer SGW.
- d) Repulsive LIPSS (R-LIPSS).

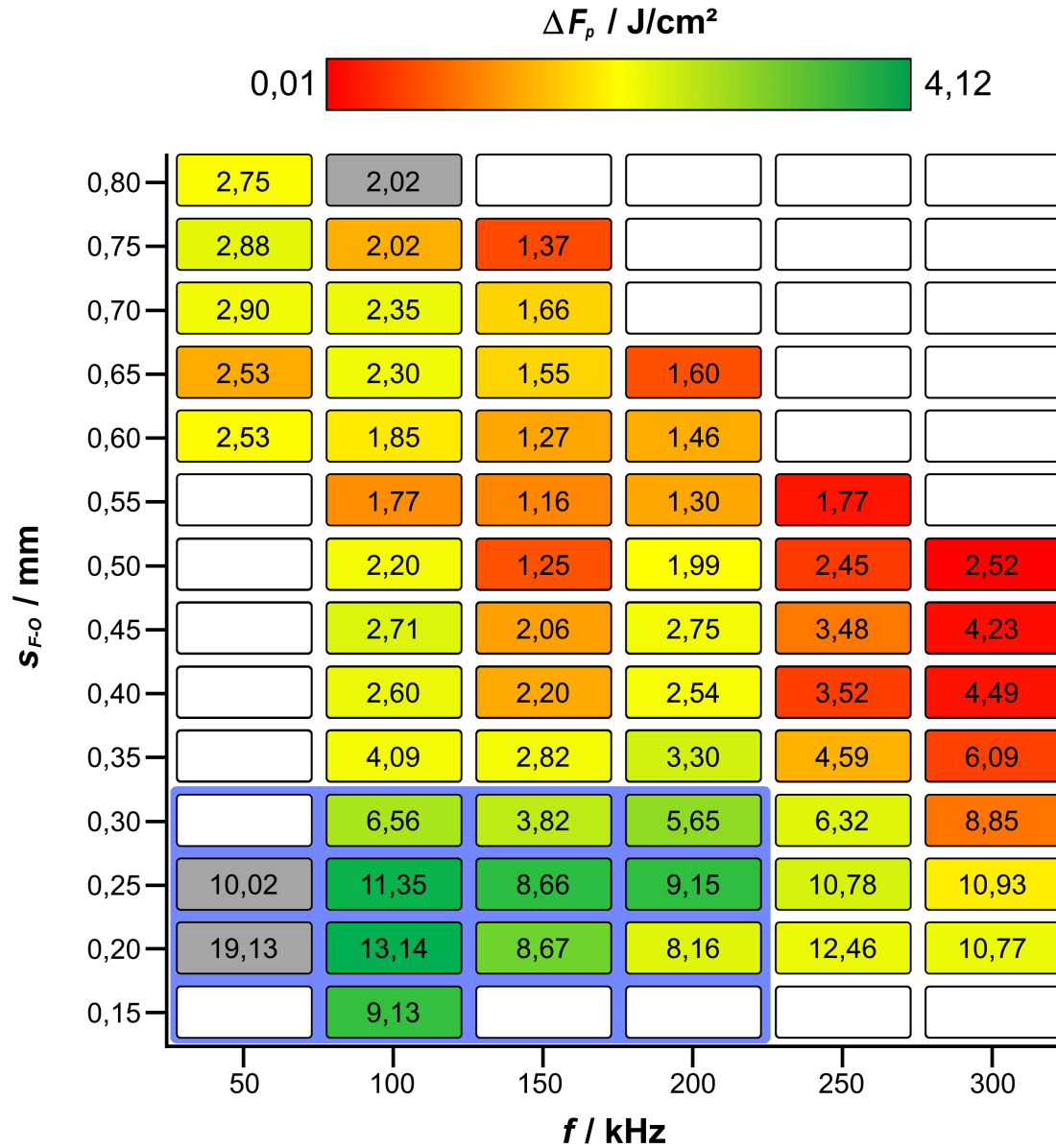
#### 4 Ergebnisse und Diskussion

Für die Erzeugung von LIPSS und SGW sind die Parameter Fokusbereich  $s_{F-O}$ , Repetitionsrate des Lasers  $f$ , Pulsfluenz  $F_p$  und Pulsüberlappung  $N_p$  von entscheidender Bedeutung. Diese Hauptparameter haben den größten Einfluss auf die entstehende Oberflächenstrukturierung und werden im Folgenden genauer diskutiert. Weitere Parameter, wie beispielsweise die Pulsenergie  $E_p$ , die Schreibgeschwindigkeit  $v$  oder die Polarisation des Laserstrahls, sind Parameter, die entweder zur Berechnung der Hauptparameter benötigt werden oder kaum bzw. keinen Einfluss auf die entstehenden Strukturen haben und deshalb nur an den betreffenden Stellen diskutiert werden.

## 4.1 Laser-induzierte periodische Oberflächenstrukturen (LIPSS)

### 4.1.1 LIPSS-Erzeugung

Die Erzeugung von LIPSS gelang in einem Bereich, welcher durch die Pulsfluenz  $F_p$  definiert wird. Nach Gleichung 3.1, 3.2 und 3.3 wird die  $F_p$  aus der Pulsenergie  $E_p$ , dem Abstand zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$  und der Repetitionsrate des Lasers  $f$  berechnet. Eine Änderung von  $E_p$ ,  $s_{F-O}$  oder  $f$  führt somit auch zu einer Veränderung der  $F_p$ . Die  $F_p$  kann als übergeordneter Parameter angesehen werden. Daher können die Werte für  $E_p$ ,  $s_{F-O}$  und  $f$  innerhalb bestimmter Grenzen gewählt werden, um das resultierende Minimum und Maximum von  $F_p$  für die erfolgreiche LIPSS-Erzeugung nicht zu unter- bzw. überschreiten. Weiterhin kann aus der Repetitionsrate  $f$  die Anzahl der überlappenden Pulse (Pulsüberlappung)  $N_p$  berechnet werden, die für die Strukturierung von Oberflächen mit Laserpulsen einen wichtigen Faktor darstellt.  $F_p$ ,  $s_{F-O}$ ,  $f$  und  $N_p$  wurden folglich als Hauptparameter der LIPSS-Erzeugung definiert. Abbildung 4.2 zeigt den  $F_p$ -Bereich in Abhängigkeit von  $s_{F-O}$  und  $f$ , in dem LIPSS erzeugt werden konnten.



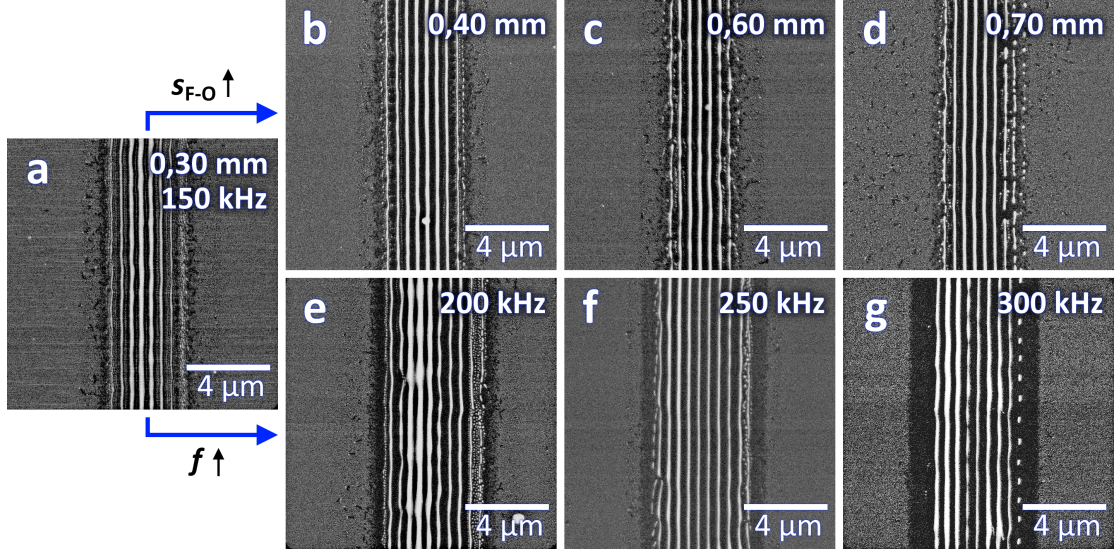
**Abb. 4.2:**  $F_p$ -Bereich in Abhängigkeit von  $s_{F-O}$  und  $f$ , in dem LIPSS erzeugt werden konnten. Die Werte in den Kästchen geben den Mittelwert der  $F_p$  in  $\text{J/cm}^2$  an, die farbliche Hervorhebung der Kästchen ist ein Maß für die Differenz  $\Delta F_p$  zwischen minimaler und maximaler  $F_p$ . Die Minima und Maxima der  $F_p$  wurden experimentell durch eine Variation der  $E_p$  bei konstanten  $s_{F-O}$  und  $f$  ermittelt. Bei grau hervorgehobenen Kästchen wurde nur in wenigen Fällen eine LIPSS-Bildung beobachtet, weshalb die angegebenen Mittelwerte einer größeren Unsicherheit unterliegen könnten. Der blau hinterlegte Bereich hebt Parameterkombinationen hervor, bei denen eine LIPSS-Bildung in einem großen  $F_p$ -Bereich mit hohen  $\Delta F_p$  gelang. Eine äquivalente Darstellung der  $E_p$  befindet sich im Anhang (Abbildung 6.2). Detaillierte Tabellen mit allen minimalen und maximalen  $F_p$  und  $E_p$  befinden sich ebenfalls im Anhang (Tabelle 6.4 bzw. 6.5).

#### 4.1 Laser-induzierte periodische Oberflächenstrukturen (LIPSS)

Zunächst kann festgehalten werden, dass LIPSS bei allen hier untersuchten Repetitionsraten  $f$  von 50 kHz bis 300 kHz erzeugt werden konnten. Im Hinblick auf  $s_{F-O}$  gelang eine LIPSS-Generierung erst ab einem Abstand von 0,15 mm zwischen Fokus und Probenoberfläche. Neben  $F_p$  ist auch  $s_{F-O}$  ein kritischer Parameter für die LIPSS-Erzeugung, da nur bei positiven  $s_{F-O}$ -Werten eine LIPSS Erzeugung möglich war. Vor allem bei einem  $s_{F-O}$  von 0,15 mm bis 0,30 mm konnten LIPSS in einem großen  $F_p$ -Bereich (hohe  $\Delta F_p$ ) erzeugt werden. Der größte  $F_p$ -Bereich in Bezug auf die  $f$  liegt zwischen 50 kHz und 200 kHz. Niedrige  $f$  sind gleichbedeutend mit verhältnismäßig langen Relaxationszeiten zwischen den Pulsen. Im Hinblick auf die für LIPSS wichtigen Interpuls-Effekte, scheinen diese langen Relaxationszeiten ein wichtiger Faktor für die Entstehung der hier generierten LIPSS zu sein. Die vergleichsweise geringen  $f$ - und  $s_{F-O}$ -Werte ( $\hat{=}$  kleinen Strahldurchmessern  $A$ ) haben gemein, dass die Pulsüberlappung  $N_p$  in diesem Bereich ebenfalls gering ist. Die durchschnittliche  $N_p$  im betreffenden  $s_{F-O}$ -Bereich von 0,15 mm bis 0,30 mm und  $f$ -Bereich von 50 kHz bis 200 kHz (Abbildung 4.2 blau hinterlegter Bereich) liegt bei 1206 überlappenden Pulsen. Der Mittelwert für  $N_p$  über den gesamten  $s_{F-O}$ - und  $f$ -Bereich, in dem eine LIPSS-Erzeugung möglich war, beträgt 2808 überlappende Pulse.

Abbildung 4.3 zeigt Beispiele der erhaltenen LIPSS bei Variation der Parameter  $s_{F-O}$  (Abbildung 4.3a-d) und  $f$  (Abbildung 4.3a, e-g). Wie bereits im Vorfeld erwähnt, bedingt eine Variation von  $E_p$ ,  $s_{F-O}$  oder  $f$  auch eine Änderung der Pulsfluenz  $F_p$ . Die  $F_p$  der gezeigten Bilder liegt im Bereich der in Abbildung 4.2 beschriebenen Parameter und stellt repräsentative Beispiele der erhaltenen LIPSS dar.





**Abb. 4.3:** Generierte LIPSS bei Variation der Parameter  $s_{F-O}$  und  $f$ .  
**a)** Ausgangspunkt: LIPSS bei  $F_p = 4,04 \text{ J/cm}^2$ ,  $s_{F-O} = 0,30 \text{ mm}$  und  $f = 150 \text{ kHz}$ .  
**b-d)** Variation von  $s_{F-O}$  im Bereich zwischen  $0,40 \text{ mm}$  und  $0,70 \text{ mm}$  bei einer fixen  $f$  von  $150 \text{ kHz}$ . Der  $s_{F-O}$  ist in der oberen rechten Ecke der Bilder angegeben.  
**b)**  $F_p = 2,70 \text{ J/cm}^2$ . **c)**  $F_p = 0,97 \text{ J/cm}^2$ . **d)**  $F_p = 2,29 \text{ J/cm}^2$ .  
**e-g)** Variation von  $f$  im Bereich von  $200 \text{ kHz}$  bis  $300 \text{ kHz}$  bei  $s_{F-O}$  zwischen  $0,20 \text{ mm}$  und  $0,25 \text{ mm}$ . Die  $f$  ist in der oberen rechten Ecke der Bilder angegeben.  
**e)**  $F_p = 12,66 \text{ J/cm}^2$ . **f)**  $F_p = 10,45 \text{ J/cm}^2$ . **g)**  $F_p = 11,03 \text{ J/cm}^2$ .

Ausgehend von dem anhand Abbildung 4.2 definierten  $F_p$ -Bereichs bei  $s_{F-O}$  von  $0,15 \text{ mm}$  bis  $0,30 \text{ mm}$  und  $f$  von  $50 \text{ kHz}$  bis  $200 \text{ kHz}$  wurden die Parameter in Richtung höherer  $s_{F-O}$  (Abbildung 4.3a-d) und  $f$  (Abbildung 4.3a, e-g) variiert. Abbildung 4.3a stellt dabei den Ausgangspunkt dar, welcher innerhalb dieses definierten Bereichs liegt. Außerhalb des definierten  $s_{F-O}$ -Bereichs in Richtung höherer Abstände zwischen Fokus und Probenoberfläche (Abbildung 4.3b-d) zeigt sich, dass die durchschnittliche Breite der LIPSS-Drähte abnimmt und die LIPSS-Drähte im Randbereich teilweise unterbrochen sind. In Abbildung 4.3a kann beobachtet werden, dass die LIPSS-Drähte im Zentrum des belasteten Bereichs breiter sind ( $d_{\text{Zentrum}} \approx 240 \text{ nm}$ ) als die LIPSS-Drähte im Randbereich ( $d_{\text{Rand}} \approx 90 \text{ nm}$ ). Dieses Phänomen zeigt sich vor allem bei Repetitionsraten  $f$  von  $150 \text{ kHz}$  oder mehr. Eine genauere Diskussion dieses Phänomens ist im Abschnitt 4.3 zu finden. Bei steigenden  $f$  (Abbildung 4.3e-g), und dadurch geringeren  $E_p$ , erhöht sich die An-

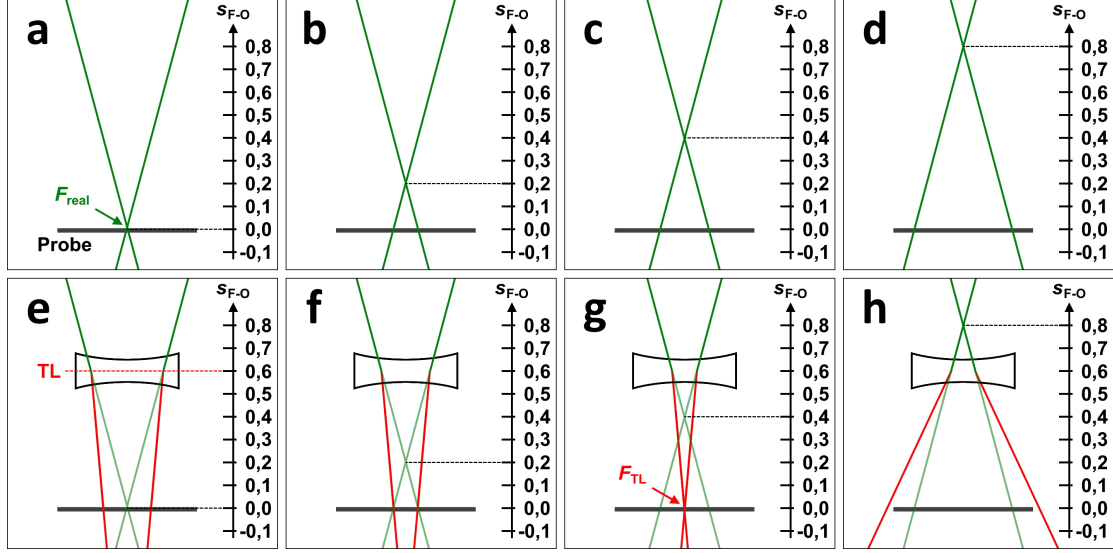
zahl der LIPSS-Drähte und verringert sich deren Breite. Grund dafür könnte die erhöhte Pulsüberlappung und damit einhergehende „thermische Nachbehandlung“ der LIPSS sein. Die äußeren Bereiche der nachfolgenden Laserpulse weisen aufgrund des Gauß-Profiles eine deutlich geringere Energie auf. Diese geringere Energie ist nicht ausreichend, um LIPSS direkt bilden zu können, jedoch um thermische Effekte zu induzieren, welche eine leichte Umstrukturierung der bereits erzeugten LIPSS induzieren.<sup>[111, 112]</sup> Teilweise entstehen auch LIPSS-Drähte mit Breitenondulationen (Abbildung 4.3e) innerhalb der Drähte. Ähnlich wie das Phänomen der ungleich breiten LIPSS-Drähte im Zentrum und im Randbereich der LIPSS, tritt auch dieses Phänomen vermehrt bei Repetitionsraten  $f$  über 100 kHz auf. Eine Diskussion über den Mechanismus der Breitenondulation befindet sich im Abschnitt 4.3.

Im Rahmen dieser Arbeit konnten LIPSS mit Linienzahlen zwischen 5 und 11 mit Drahtbreiten von 80 nm bis 330 nm erzeugt werden. Die Periodizität der LIPSS  $\Lambda$  betrug durchschnittlich 492 nm, was knapp unterhalb der verwendeten Laserwellenlänge  $\lambda$  von 532 nm liegt und im, für LSFL ( $\Lambda_{\text{LSFL}} \approx \lambda$ ), erwarteten Rahmen liegt. Außerhalb des definierten Bereichs ( $s_{\text{F-O}}$  von 0,15 mm bis 0,30 mm und  $f$  von 50 kHz bis 200 kHz, in Abbildung 4.2 blau hinterlegt) wurden zunehmend unterbrochene LIPSS-Drähte an den Rändern des belasteten Bereichs, Breitenondulationen der LIPSS-Drähte oder insgesamt dünnere LIPSS-Drähte beobachtet.

Auffällig in Abbildung 4.2 ( $F_{\text{p}}$ -Bereich zur LIPSS-Erzeugung) ist weiterhin der  $s_{\text{F-O}}$ -Bereich von 0,30 mm bis 0,55 mm bei  $f = 50$  kHz. In diesem Bereich können wider Erwarten keine LIPSS erzeugt werden. Üblicherweise kann bei einer  $F_{\text{p}}$ -Darstellung, wie sie in Abbildung 4.2 gezeigt ist, ein Bereich zu hoher  $F_{\text{p}}$  (niedrige  $s_{\text{F-O}}$ , niedrige  $f$ ) und zu geringer  $F_{\text{p}}$  (hohe  $s_{\text{F-O}}$ , hohe  $f$ ) erkannt werden. Zu hohe  $F_{\text{p}}$  spiegeln sich experimentell als „verbrannte“ Stellen auf der Probe wieder. Bei zu niedrigen  $F_{\text{p}}$  bilden sich keine LIPSS aus bzw. es sind keine Einwirkungen der Laserstrahlung auf der Probenoberfläche sichtbar. Im  $s_{\text{F-O}}$ -Bereich von 0,30 mm

bis 0,55 mm wurden Oberflächenschäden beobachtet, die aufgrund zu hoher  $F_p$  entstanden sind und denen im Bereich des Fokus ( $s_{F-O} = 0,00$  mm) gleichen, wenn auch weniger stark ausgeprägt. Dem erwarteten  $F_p$ -Trend folgend, sollte die  $F_p$  in diesem Bereich deutlich geringer sein und tendenziell eine Bildung von LIPSS ermöglichen.

Eine denkbare Erklärung hierfür könnte der Einfluss einer thermischen Linse (TL) sein, welche sich knapp über der Probenoberfläche bildet.<sup>[113, 114]</sup> Durch die erhöhte Temperatur der Oberfläche erhitzt sich auch deren Umgebung. Der Dichteunterschied der heißeren Atmosphäre direkt über der Probenoberfläche und der angrenzenden kälteren Atmosphäre ist gleichbedeutend mit aneinander angrenzenden, unterschiedlichen Brechungsindices  $n$ , welche folglich die thermische Linse erzeugen. Möglich wäre auch eine thermische Linse durch die Bildung von Plasma, welches sich lokal über der Bestrahlungsstelle befindet. In beiden Fällen würde die thermische Linse die einfallenden Strahlen nach außen brechen, da sowohl heiße Luft ( $n_{\text{heiß}}$ ) als auch Plasma ( $n_{\text{plasma}}$ ) einen geringeren Brechungsindex als die umgebende kühlere Luft ( $n_{\text{kühl}}$ ) besitzen.<sup>[115, 116]</sup> Abbildung 4.4 zeigt schematisch den Einfluss einer thermischen Linse bei unterschiedlichen  $s_{F-O}$ .



**Abb. 4.4:** Effekt einer thermischen Linse (TL) auf die Erzeugung von LIPSS bei unterschiedlichen  $s_{F-O}$ .

**a-d)** Strahlverlauf ohne den Einfluss einer thermischen Linse. Bei  $s_{F-O} = 0,00$  mm befindet sich der Fokus  $F_{\text{real}}$  direkt auf der Probenoberfläche.

**e-h)** Veränderter Strahlverlauf (rot) durch den Einfluss einer thermischen Linse ( $s_{F-O}(\text{TL}) = 0,60$  mm). Bei  $s_{F-O} = 0,40$  mm wird ein zweiter Fokus  $F_{\text{TL}}$  auf der Probenoberfläche erzeugt.

**a+e)**  $s_{F-O} = 0,00$  mm. **b+f)**  $s_{F-O} = 0,20$  mm.

**c+g)**  $s_{F-O} = 0,40$  mm. **d+h)**  $s_{F-O} = 0,80$  mm.

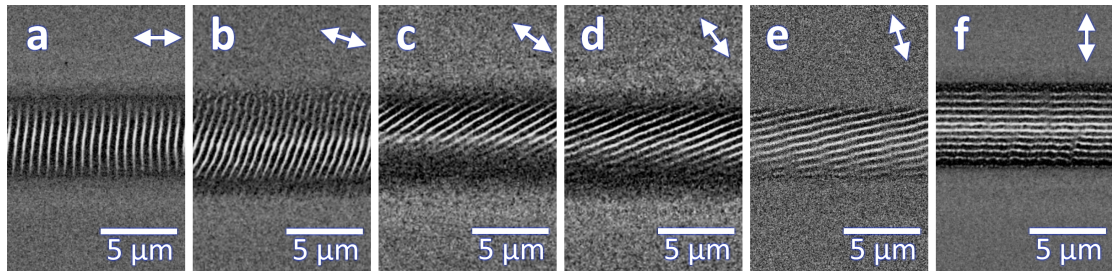
Eine so gebildete thermische Linse könnte die Strahlen zum Teil in einen zweiten Fokus  $F_{\text{TL}}$  bündeln. Aus der Bedingung  $(n_{\text{heiß}} \wedge n_{\text{plasma}}) < n_{\text{kühl}}$  ergibt sich, dass die TL eine Streulinse darstellt. Um den  $F_{\text{TL}}$  auf der Probenoberfläche erzeugen zu können, muss die TL dementsprechend in einem Abstand von mehr als 0,40 mm über der Oberfläche positioniert sein (Abbildung 4.4e-h). Eine TL in einem Abstand von weniger als 0,40 mm über der Probenoberfläche würde nicht zu einem zweiten Fokus, sondern lediglich zu einer Aufweitung des Strahls führen (analog zu Abbildung 4.4h). Die Erzeugung eines zweiten Fokus durch die TL ist beispielhaft in Abbildung 4.4g dargestellt und könnte die experimentell beobachteten Oberflächenschäden erklären. Abbildungen 4.4e,f und h sollen dabei stark vereinfacht den veränderten Strahlverlauf für  $s_{F-O}$ -Werte unterhalb und oberhalb der TL darstellen. Aufgrund fehlender Informationen über die tatsächliche Herkunft

(heiße Luft oder Plasma) und Brechkraft (bedingt durch Lufttemperatur bzw. Plasmadichte) der TL kann ihre Position nicht genau bestimmt werden.

### 4.1.2 Änderung der LIPSS-Orientierung durch Polarisationskontrolle

#### Einfache Polarisationsänderung

Mit Hilfe des gewählten Laseraufbaus inklusive phase-only LCoS war es möglich, die Polarisation des Laserstrahls zu beeinflussen. Die hier erzeugten LSFL orientieren sich auf Metallen und Halbleitern mit kleiner Bandlücke senkrecht zur Laserpolarisation des Laserstrahls und auf Halbleitern mit höherer Bandlücke und Dielektrika parallel zur Polarisation.<sup>[117]</sup> Durch eine Änderung der Polarisation des Laserstrahls war es demnach möglich die Ausrichtung der erzeugten LIPSS zu beeinflussen. Die LIPSS-Orientierung im hier verwendeten Si/SiO<sub>2</sub>/Au-System wird durch das Bulk-Material, also Si, bestimmt. Silicium weist mit 1,1 eV eine vergleichsweise kleine Bandlücke auf, weshalb sich LIPSS auf Silicium senkrecht zur Laserpolarisation ausbilden. Abbildung 4.5 zeigt die erzeugten LIPSS bei Variation der Polarisationsrichtung des Lasers und einhergehender Änderung der LIPSS-Orientierung.



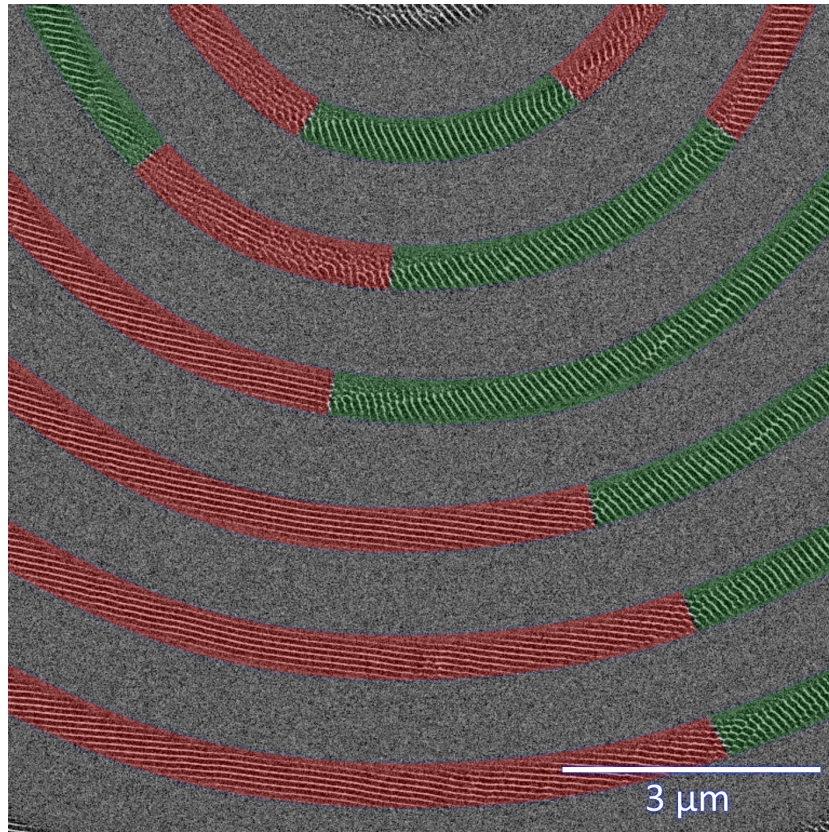
**Abb. 4.5:** Erhaltene LIPSS-Orientierungen bei unterschiedlichen Polarisationen, erzeugt durch eine Polarisationsdrehung des Laserstrahls am LCoS. Die Doppelpfeile zeigen die Laserpolarisation an.

Der LCoS ist in der Lage die Polarisation des Laserstrahls um einen Wert zwischen  $0\pi$  und  $2\pi$  in  $\pi/256$ -Schritten zu drehen. Dabei entspricht  $0\pi$  bzw.  $2\pi$  einer ho-

horizontalen Laserpolarisation und  $1\pi$  einer vertikalen Polarisation. Experimentell bedeutet dies, dass über 100 Teilschritte zwischen horizontaler und vertikaler Polarisation eingestellt werden konnten. Auf eine Darstellung der LIPSS bei Polarisationsdrehungen zwischen  $1\pi$  und  $2\pi$  wurde verzichtet, da diese lediglich eine gespiegelte Version der zwischen  $0\pi$  und  $1\pi$  erzeugten LIPSS zeigen würden.

Weiterhin wurde versucht, bei Änderung der Schreibrichtung die Orientierung der LIPSS durch Änderung der Laserpolarisation anzupassen. Dies hätte zur Folge, dass LIPSS beispielsweise auch in Kurven geschrieben werden könnten, ohne dass sich deren Ausrichtung innerhalb der geschriebenen Linie ändert. Experimentell gelang dies durch Variation des auf dem LCoS dargestellten Bildes (siehe Funktionsweise LCoS in Kapitel 3) und damit einhergehender Polarisationsänderung des Laserstrahls. Abbildung 4.6 zeigt LIPSS, bei denen das LCoS-Bild und somit die Polarisation des Laserstrahl abhängig von der Schreibrichtung variiert wurde.





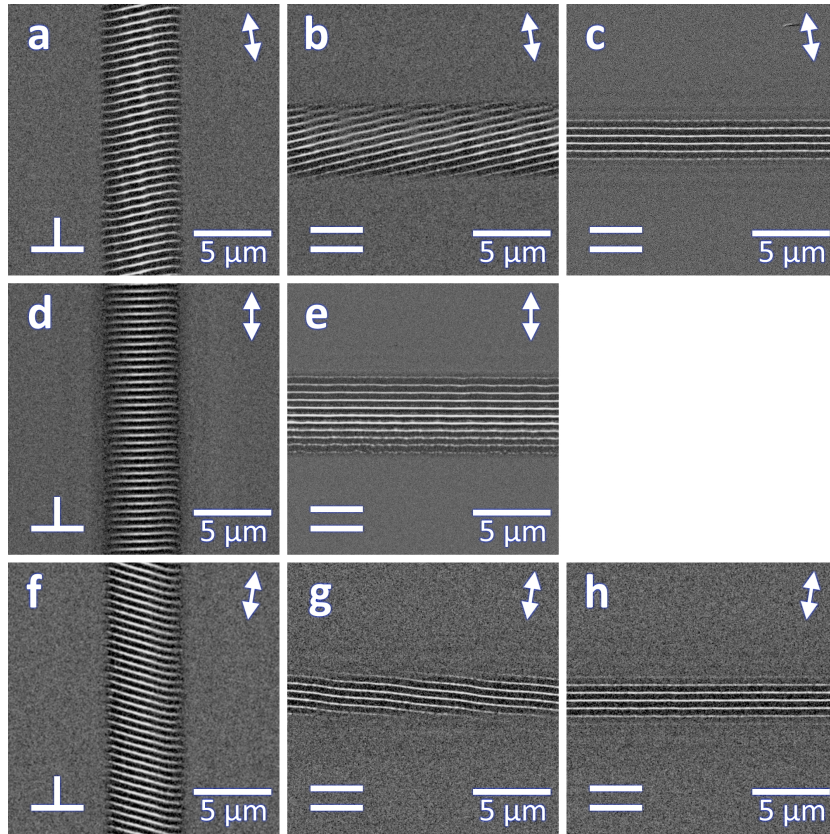
**Abb. 4.6:** LIPSS-Linien mit unterschiedlichen Kurvenradien bei schreibrichtungsabhängiger Polarisationsdrehung. Farblich hervorgehoben sind die Sprünge in der LIPSS-Orientierung durch Wechsel des LCoS-Bildes.

Wie in Abbildung 4.6 zu sehen ist, gelang eine schreibrichtungsgekoppelte Polarisationsdrehung nur bedingt. Grund hierfür ist die geringe Bildwiederholungsrate des LCoS von maximal 60 Bildern pro Sekunde. Je kleiner die geschriebenen Kreisradien sind, desto öfter muss die Polarisation des Laserstrahls nachgeregelt werden, um die LIPSS-Orientierung parallel zur Schreibrichtung zu erhalten. Bei Strukturen im Mikrometerbereich reicht die Bildwiederholrate des LCoS nicht aus, um die eingestellte LIPSS-Orientierung zu halten. Ein weiteres Problem bei schnellen Richtungswechseln ist die Verzögerung, die mit der Verarbeitung der Daten einhergeht. Die neue Position bzw. der Richtungswechsel muss erst an den Rechner übertragen werden, der dann die neuen LCoS-Bilder berechnet und an den LCoS sendet. In Abbildung 4.6 sind die durch eine zu geringe Bildwiederholrate und

Verzögerung bei der Datenweitergabe entstandenen Fehler farblich hervorgehoben.

Außerdem konnte ein weiterer Effekt beobachtet werden, welcher als zusätzliche Fehlerquelle fungieren kann. Bei Polarisationen nahe  $0\pi$  (horizontale Pol.) oder  $1\pi$  (vertikale Pol.), bei denen sich LIPSS nahezu senkrecht bzw. parallel zur Schreibrichtung orientieren, wurden teilweise senkrechte oder parallele LIPSS ohne Verkipfung beobachtet (Abbildung 4.7 beispielhaft für den Bereich um  $1\pi$ ). Diese Tatsache ist auf das Phänomen der Selbstähnlichkeit der LIPSS zurückzuführen.<sup>[42]</sup> LIPSS orientieren sich bei ihrer Entstehung zum Teil an ihrer Umgebung und richten sich nach bereits bestehenden Strukturen aus. Dieser Effekt konnte vor allem bei LIPSS beobachtet werden, die sich nahezu parallel bzw. senkrecht zur Schreibrichtung orientieren (Abbildung 4.7 b+c, g+h).





**Abb. 4.7:** Einfluss der Schreibrichtung auf die LIPSS-Orientierung. Die Doppelpfeile stellen die Laserpolarisation dar. In der unteren linken Ecke jedes Bildes ist die LIPSS-Orientierung relativ zur Schreibrichtung symbolisiert.

**a+b)** LIPSS bei einer Polarisation von  $0,9\pi$  mit leichter Verkipfung zur Schreibrichtung.

**c)** LIPSS bei einer Polarisation von  $0,9\pi$  ohne Verkipfung zur Schreibrichtung.

**d+e)** LIPSS bei einer Polarisation von  $1,0\pi$  ohne Verkipfung zur Schreibrichtung.

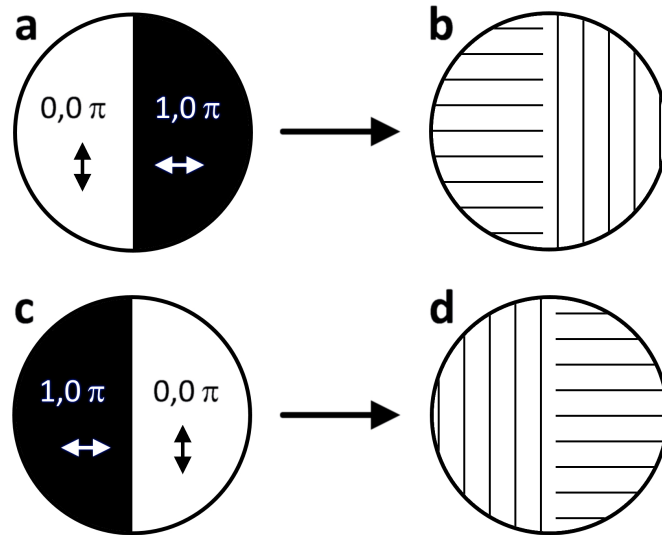
**f+g)** LIPSS bei einer Polarisation von  $1,1\pi$  mit leichter Verkipfung zur Schreibrichtung.

**h)** LIPSS bei einer Polarisation von  $1,1\pi$  ohne Verkipfung zur Schreibrichtung.

### Komplexe Polarisationsänderung

In vorherigen Experimenten mit einfacher Polarisationsänderung konnte gezeigt werden, dass sich die Orientierung der LIPSS durch das am LCoS angezeigte Bild ändern. Dazu wurden Bilder gewählt, um die Polarisation des gesamten Laserstrahls zu ändern. In folgenden Versuchen wurden Bilder auf dem LCoS dargestellt,

die jeweils auf der linken und rechten Bildhälfte unterschiedliche Polarisierungen erzeugen. Eine Bildhälfte erzeugt dabei einen vertikal polarisierten Laserstrahl und die andere einen horizontal polarisierten Strahl. Abbildung 4.8 zeigt beispielhaft das auf dem LCoS dargestellte Bild (Abbildung 4.8a+c) und die daraus erwartete LIPSS-Orientierung (Abbildung 4.8b+d).

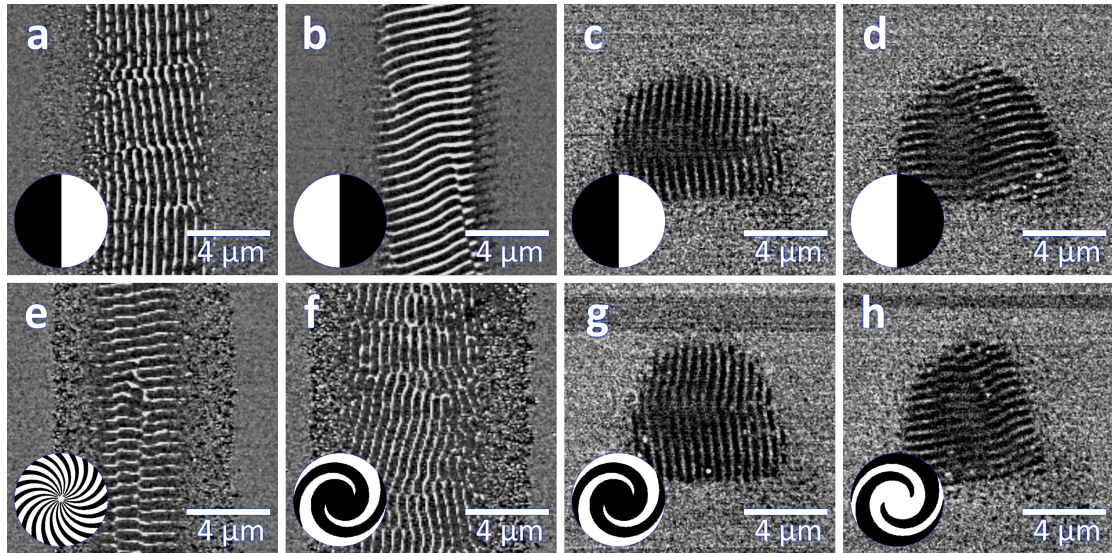


**Abb. 4.8:** Schematische Darstellung des am LCoS angezeigten Bildes und der daraus erwarteten LIPSS-Orientierung.

**a+c)** Auf dem LCoS dargestelltes Bild, das einer Polarisationsdrehung um  $0,0 \pi$  (horizontal) bzw.  $1,0 \pi$  (vertikal) entspricht.

**b+d)** Theoretisch erwartete LIPSS-Orientierungen.

Zusätzlich zu den LIPSS-Linien wurden bei diesen Experimenten auch LIPSS-Punkte erzeugt, ohne Bewegung des Laserstrahls über die Probe. Da sich bereits im Vorfeld gezeigt hatte, dass die Schreibrichtung einen Einfluss auf die Entstehung der LIPSS hat (Abbildung 4.7), sollte dieser Einfluss unterdrückt bzw. verhindert werden. Abbildung 4.9 zeigt die erhaltenen LIPSS unter der Verwendung von zweigeteilten Polarisationsbildern auf dem LCoS bei unterschiedlichen Mustern.



**Abb. 4.9:** Erzeugte LIPSS-Linien und -Punkte unter der Verwendung komplexer Polarisationsbilder.

**a+b)** LIPSS-Linien bei zweigeteiltem Polarisationsbild.

**c+d)** LIPSS-Punkte bei zweigeteiltem Polarisationsbild.

**e)** LIPSS-Linie bei komplexem, spiralartigem Polarisationsbild.

**f)** LIPSS-Linie bei einfachem, spiralartigem Polarisationsbild.

**g+h)** LIPSS-Punkte bei einfachem, spiralartigem Polarisationsbild.

Wie in den Bildern 4.9a+b zu sehen ist, besitzen die generierten LIPSS nicht wie erwartet unterschiedliche Orientierungen auf der linken und rechten Hälfte der LIPSS-Linie, sondern weisen eine leichte Verkipfung in ihrer Orientierung auf. Bei den LIPSS-Punkten (Abbildung 4.9c+d) wurden ähnliche Ergebnisse erhalten, die erzeugten LIPSS-Punkte weisen Orientierungen auf, die bei einer Mischung der beiden Polarisierungen zu erwarten gewesen wäre. Die dominante Polarisation scheint hierbei die des Halbbildes auf der linken Seite des LCoS-Displays zu sein. Eine mögliche Erklärung könnte eine Verzerrung des Gauß-Profiles des Laserstrahls sein, hervorgerufen durch den Öffnungswinkel des Laserstrahls am LCoS. In den Bildern der LIPSS-Punkte (Abbildung 4.9c+d, g+h) ist gut zu sehen, dass der laserstrukturierte Bereich nicht zirkular ist und sich je nach LIPSS-Orientierung anders verformt.

Weitere Experimente (Abbildung 4.9e-h), bei denen Polarisationsbilder mit komplexeren Mustern auf dem LCoS dargestellt wurden, zeigen eine noch schlechtere

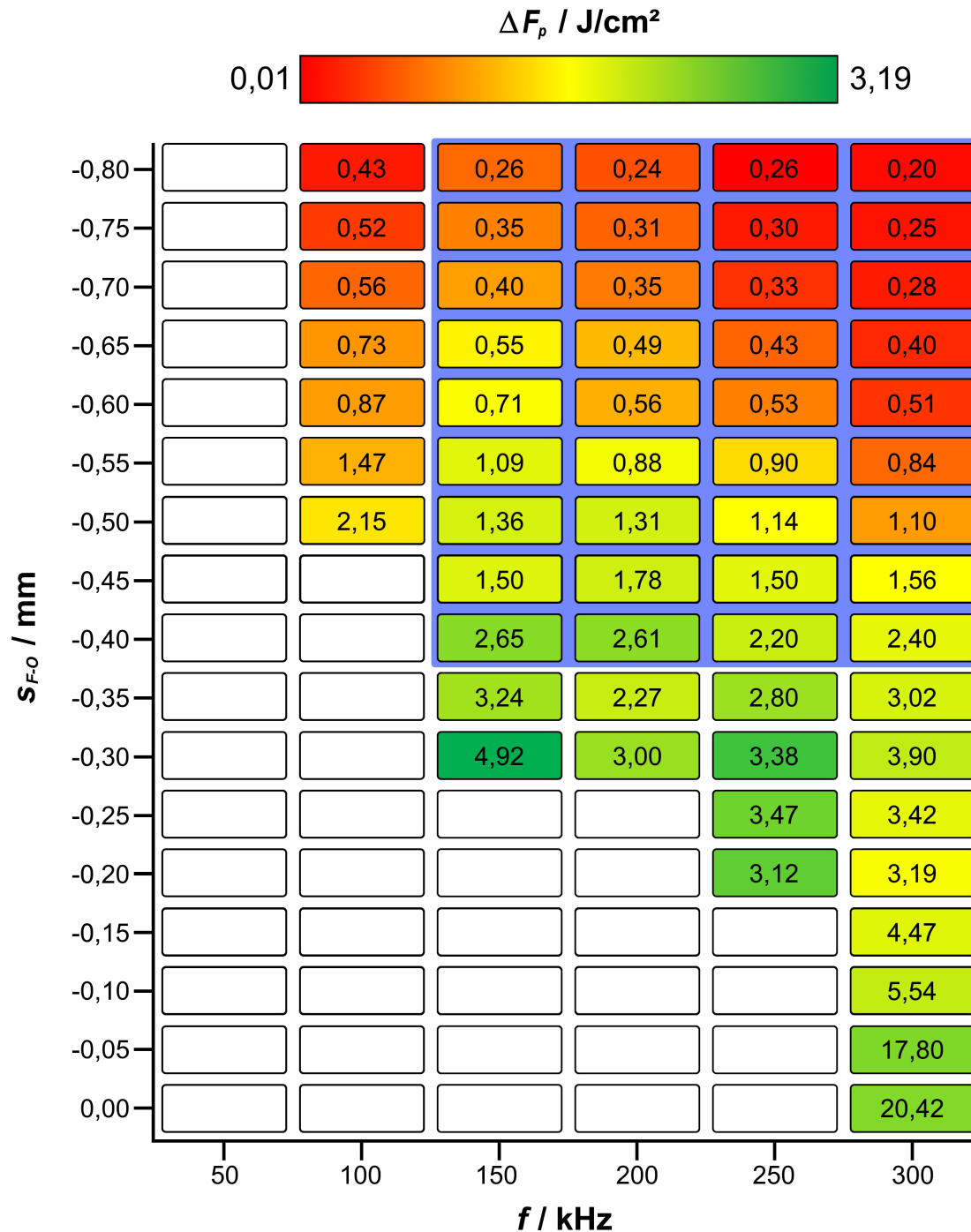
Ausprägung der LIPSS-Linien als bei Experimenten mit nur einer Polarisierung. Die Orientierung der LIPSS scheint sich, sowohl für die Linien als auch für die Punkte, aufgrund der Komplexität des Musters, nach dem Teil des Bildes auszurichten, welches zu einem größeren Anteil in der Mitte des bestrahlten Bereichs liegt. Die Erzeugung von LIPSS-Linien oder -Punkten mit zwei unterschiedlichen Orientierungen gelang somit nicht. Eine mögliche Erklärung hierfür könnte die Selbstähnlichkeit der LIPSS sein. Die LIPSS, welche sich nach der dominanten Polarisierung orientieren, dirigieren alle weiteren LIPSS in die dominante Orientierung, sodass nur LIPSS mit einer Ausrichtung erzeugt werden können.



## 4.2 Single Gold Wires (SGW)

### 4.2.1 SGW-Erzeugung

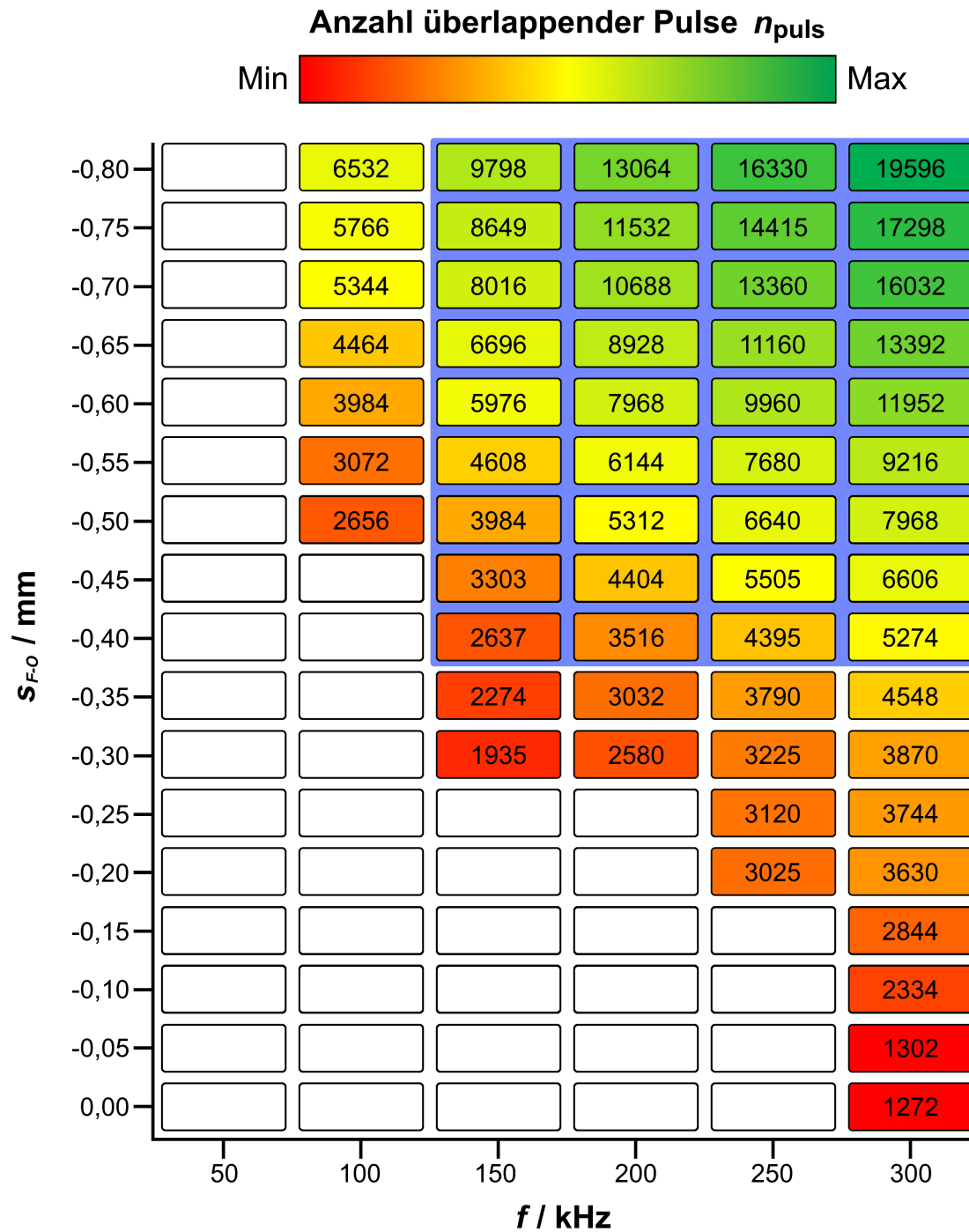
Ähnlich zur LIPSS-Erzeugung konnte auch für die Generierung von SGW ein  $F_p$ -Bereich in Abhängigkeit von  $s_{F-O}$  und  $f$  bestimmt werden. Im Gegensatz zur LIPSS-Erzeugung ist jedoch neben der  $F_p$ -Spanne ( $\Delta F_p$ ) besonders die Pulsüberlappung  $N_p$  ausschlaggebend für die Generierung von SGW. Um dennoch einen Vergleich mit LIPSS zu ermöglichen, ist in Abbildung 4.10 der  $F_p$ -Bereich in den Grenzen von  $s_{F-O}$  und  $f$  dargestellt, in dem SGW erzeugt werden konnten.



**Abb. 4.10:**  $F_p$ -Bereich in Abhängigkeit von  $s_{F-O}$  und  $f$ , in dem SGW erzeugt werden konnten. Die Werte in den Kästchen geben den Mittelwert der  $F_p$  in  $\text{J/cm}^2$  an, die farbliche Hervorhebung der Kästchen ist ein Maß für die Differenz  $\Delta F_p$  zwischen minimaler und maximaler  $F_p$ . Die Minima und Maxima der  $F_p$  wurden experimentell durch eine Variation der  $E_p$  bei konstanten  $s_{F-O}$  und  $f$  ermittelt. Der blau hinterlegte Bereich hebt Parameterkombinationen hervor, bei denen eine SGW-Bildung mit geringen Qualitätsschwankungen der SGW gelang. Eine äquivalente Darstellung der  $E_p$  befindet sich im Anhang (Abbildung 6.3). Detaillierte Tabellen mit allen minimalen und maximalen  $F_p$  und  $E_p$  befinden sich ebenfalls im Anhang (Tabelle 6.6 bzw. 6.7).

Im Gegensatz zu LIPSS konnten SGW nicht bei allen verwendeten Repetitionsraten  $f$  generiert werden. Die SGW-Erzeugung gelang erst ab einer  $f$  von 100 kHz oder mehr, bei der schwach ausgeprägte SGW beobachtet werden konnten. Wie für LIPSS spielt auch für SGW der  $s_{F-O}$  eine entscheidende Rolle. SGW bildeten sich nur bei negativen  $s_{F-O}$ . Bei  $f = 300$  kHz konnten SGW im gesamten negativen  $s_{F-O}$ -Bereich zwischen 0,00 mm und -0,80 mm generiert werden. Analog zur LIPSS-Bildung kann auch hier ein Bereich definiert werden, in dem die erzeugten SGW geringen Qualitätsschwankungen (z.B. Breite  $d$  oder Bildung von Ondulationen) unterliegen. Dieser, in Abbildung 4.10 blau hinterlegte Bereich, befindet sich bei einem Abstand zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$  zwischen -0,40 mm und -0,80 mm und einer Repetitionsrate  $f$  von 150 kHz bis 300 kHz. Die  $\Delta F_p$ -Spanne in diesem Bereich ist verhältnismäßig gering, entscheidend ist jedoch die Pulsüberlappung  $N_p$ , die aufgrund hoher  $f$  und hoher (negativer)  $s_{F-O}$  ( $\hat{=}$  großen Strahldurchmessern  $A$ ) insgesamt höher ist. Abbildung 4.11 zeigt analog zu Abbildung 4.10 die Pulsüberlappung  $N_p$  im identischen  $f$ - und  $s_{F-O}$ -Bereich.

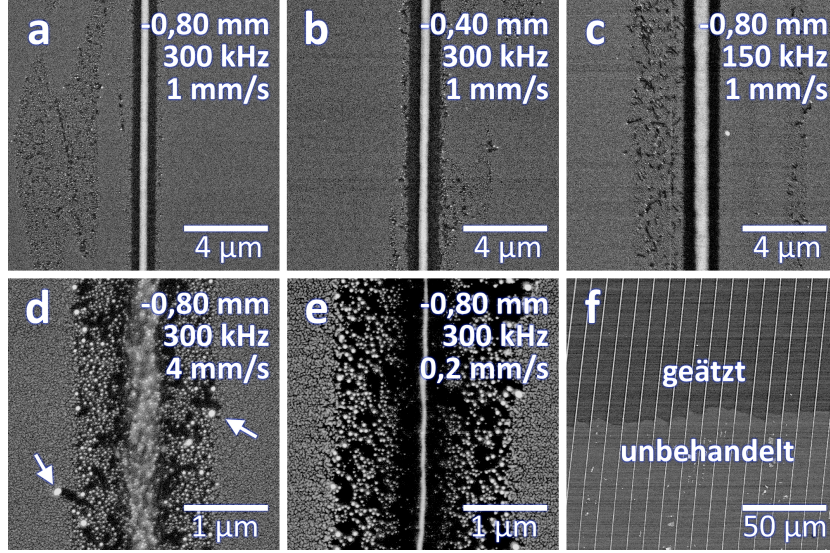




**Abb. 4.11:** Pulsüberlappung  $N_p$  bei einer Schreibgeschwindigkeit  $v$  von  $1,0 \text{ mm/s}$  in Abhängigkeit von  $s_{F-O}$  und  $f$ , in dem SGW erzeugt werden konnten. Der blau hinterlegte Bereich hebt Parameterkombinationen hervor, bei denen eine SGW-Bildung mit geringen Qualitätsschwankungen der SGW gelang. Eine detaillierte Tabelle aller  $N_p$  ist im Anhang zu finden (Tabelle 6.3).

Die Anzahl der überlappenden Pulse  $N_p$  im definierten Bereich (blau hinterlegt) beträgt im Mittel 8945 und über den gesamten Bereich, in dem eine SGW-Erzeugung möglich war, 6786 überlappende Pulse. Weiterhin bedeuten höhere  $f$  auch eine geringere Relaxationszeit zwischen den Laserpulsen. Durch ebendiese Faktoren der hohen Pulsüberlappung und der geringen Pulsrelaxationszeit erhöht sich die Trapping-Stabilität einer optischen Pinzette.<sup>[80]</sup> Höhere  $N_p$  und kurze Relaxationszeiten stabilisieren die optische Pinzette, da sie einen zeitlich homogenen Energieeintrag gewährleisten und die „Aus“-Zeiten der optischen Pinzette verringern. Die Beobachtung, dass eine SGW-Bildung vermehrt bei hohen  $f$  und  $N_p$  stattfindet, ist ein erstes Indiz dafür, dass der zugrunde liegende Mechanismus für die SGW eine optische Pinzette ist.

Im Vergleich zu den vorher gezeigten LIPSS ist die Erzeugung der SGW weniger empfindlich gegenüber einer Parametervariation von  $F_p$  oder  $s_{F-O}$ . Abbildung 4.12 zeigt SEM-Aufnahmen von SGW bei der Variation der Parameter  $s_{F-O}$ ,  $f$  und der Schreibgeschwindigkeit  $v$ .



**Abb. 4.12:** Generierte SGW bei Variation der Parameter  $s_{F-O}$ ,  $f$  und  $v$ . Die jeweiligen Parameter sind in der oberen rechten Ecke der Bilder dargestellt. Die Pfeile in **d**) markieren Goldpartikel, welche aus der Strahlmitte verdrängt wurden.

**a)**  $F_p = 0,22 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 19596$ . **b)**  $F_p = 3,06 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 5274$ .

**c)**  $F_p = 0,25 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 9798$ . **d)**  $F_p = 0,22 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 4899$ .

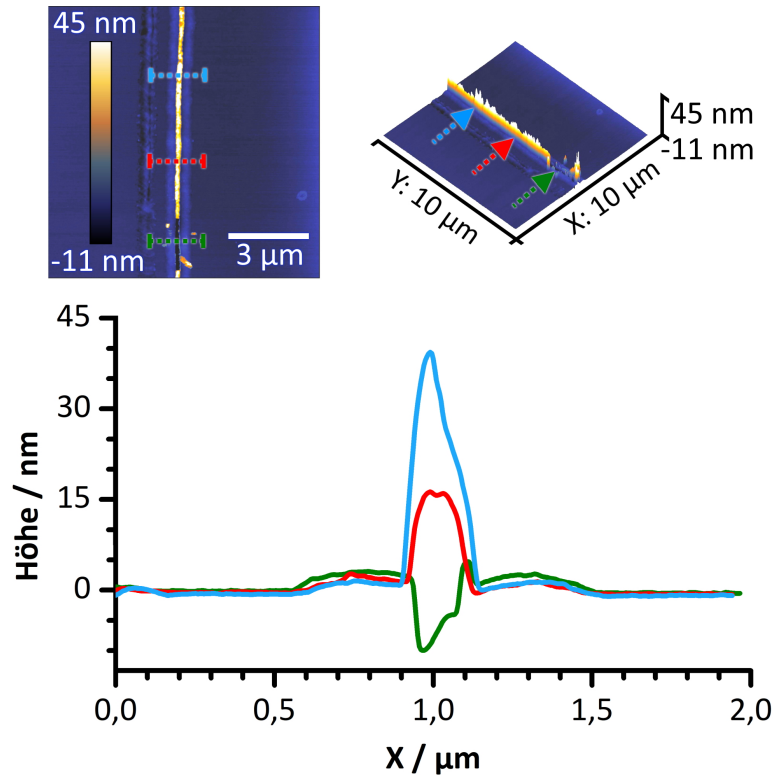
**e)**  $F_p = 0,22 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 97980$ .

**f)** Probe mit mehreren SGW dicht nebeneinander. Die obere Hälfte der Probe ist mit Königswasser ( $\text{HCl}:\text{HNO}_3$ , 3:1) geätzt. In der geätzten sowie in der unbehandelten Hälfte der Probe sind die SGW unbeschädigt.

Unter geeigneten Parametern (siehe Abbildung 4.10 bzw. 4.11) lassen sich SGW mit Breiten  $d$  zwischen  $\sim 55 \text{ nm}$  und  $715 \text{ nm}$  ( $d_{\text{Median}} = 370 \text{ nm}$ ) erzeugen. Solange eine  $f$  von  $250 \text{ kHz}$  oder mehr zur Generierung der SGW verwendet wurde, zeigen sich bei Änderungen der  $F_p$  oder  $s_{F-O}$  kaum Unterschiede in der Breite oder Integrität der SGW (Abbildung 4.12a+b). Geringere  $f$  (Abbildung 4.12c) weisen einen Zusammenhang zwischen SGW-Breite und  $s_{F-O}$  auf. Ist der Abstand zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$  sehr gering ( $0,00 \text{ mm} < s_{F-O} < -0,20 \text{ mm}$ ) oder sehr groß ( $-0,70 \text{ mm} < s_{F-O} < -0,80 \text{ mm}$ ), werden breitere SGW erzeugt, bis zu einer Maximalbreite von  $715 \text{ nm}$ . Der Grund hierfür könnte die höhere Relaxationszeit bei niedrigeren  $f$  sein, die zu einer Destabilisierung bzw. Abschwächung der attraktiven Kraft der optischen Pinzette führt. In Kombination mit der geringeren Pulsüberlappung  $N_p$  bei niedrigen  $s_{F-O}$ , bzw. geringen  $F_p$  bei höheren  $s_{F-O}$ ,

führt dies zu einer Linienverbreiterung. Durch eine Erhöhung bzw. Erniedrigung der Schreibgeschwindigkeit  $v$  (Abbildung 4.12d+e) konnte die Pulsüberlappung variiert werden, welche wiederum direkt proportional zum Energieeintrag in die Probenoberfläche ist. Geringe Energieeinträge führen, bei ansonsten gleichen Parametern (vgl. Abbildung 4.12a+d), zu sehr schwach ausgeprägten SGW. Höhere Energieeinträge (vgl. Abbildung 4.12a+e) erzeugen dünnere SGW mit Linienbreiten von minimal  $\sim 55$  nm. Der hohe Energieeintrag führt zu hohen repulsiven Kräften (Thermophorese, positive Photophorese), wodurch Gold aus der Strahlmitte verdrängt werden könnte und nicht mehr für die Bildung der SGW zur Verfügung steht. Gut zu sehen ist dieser Effekt in Abbildung 4.12d (mit Pfeilen markiert), bei dem einzelne Goldpartikel aus der Strahlmitte verdrängt wurden und kleinere Partikel mitgerissen haben. Weiterhin ist in den Abbildungen 4.12d+e ein Dewetting der aufgesputterten Goldschicht zu erkennen, wodurch im Bereich der Strahlmitte (höchste Intensität) Goldnanopartikel gebildet wurden.<sup>[118]</sup> Ein Ätzen der Proben mit Königswasser ( $\text{HCl}:\text{HNO}_3$ , 3:1) löste diese Goldpartikel auf, ohne die SGW zu beschädigen (Abbildung 4.12f). Dies wurde zuvor bereits bei Gold-LIPSS auf Si-Wafern beobachtet, welche nach bzw. während ihrer Entstehung eine passivierende  $\text{SiO}_2$ -Schicht ausbilden.<sup>[43]</sup>

Um einen 3-dimensionalen Eindruck der SGW zu erhalten, wurden AFM-Aufnahmen gemacht. Die zuvor aufgesputterte Goldschicht, sowie die lose aufliegenden Goldpartikel, welche durch Dewetting entstanden sind, wurden vorher mit Königswasser ( $\text{HCl}:\text{HNO}_3$ , 3:1) entfernt, um Messfehler zu vermeiden. Abbildung 4.13 zeigt AFM-Aufnahmen der SGW nach dem Waschen mit Königswasser, sowie die daraus erhaltenen Höhenprofile.



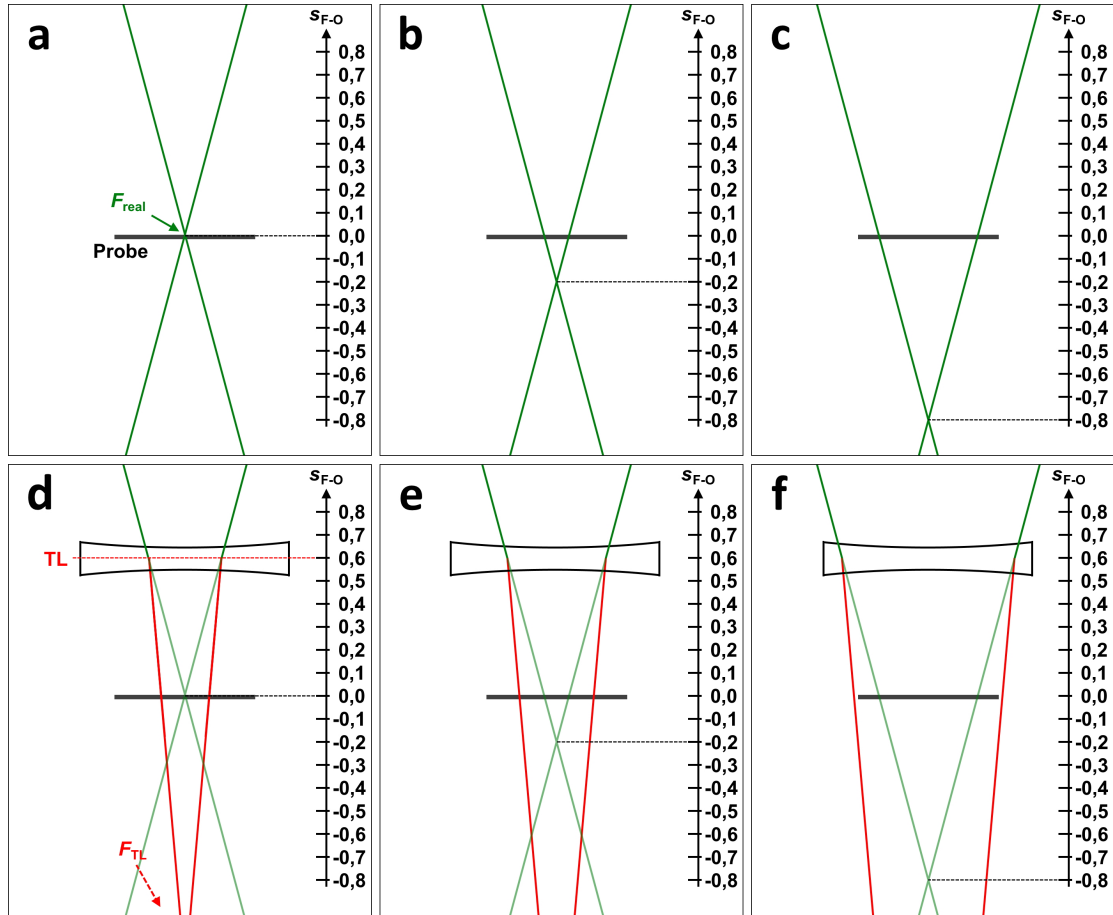
**Abb. 4.13:** AFM-Aufnahmen der SGW nach dem Waschen mit Königswasser. Im unteren Teil des Bildes ist ein Teil der SGW während der Messung herausgelöst worden. Die farbigen Linien bzw. Pfeile markieren die Daten für die Erstellung des Höhenprofils.

Aus den AFM-Aufnahmen ist ersichtlich, dass die SGW zum Teil in die Wafer-Oberfläche eingesunken sind. Die Gesamtdicke der SGW beträgt zwischen 26 nm und 49 nm, wobei ca. 9 nm davon unterhalb der Probenoberfläche liegen. Für die dargestellten AFM-Messungen wurde der Kontaktmodus gewählt. Durch die daraus resultierende erhöhte Auflagekraft löste sich ein Teil der SGW heraus (unterer Bildabschnitt), wodurch eine Messung der Einsinktiefe der SGW in den Wafer möglich war. Außerdem ist auf beiden Seiten der SGW eine leichte Erhebung von ca. 3 nm Höhe und 250 nm Breite auszumachen. Diese Erhebung könnte eine Folge der hohen Hitzeeinwirkung in diesem Bereich sein, woraufhin sich amorphes  $\text{SiO}_2$  gebildet hat, welches voluminöser ist als kristallines Silicium.<sup>[119]</sup>

Analog zum möglichen Einfluss einer thermischen Linse bei der LIPSS-Bildung (Abbildung 4.4), kann dies auch für die Bildung der SGW diskutiert werden. Für die thermische Linse (TL) werden dabei identische Annahmen getroffen:

1. Bildung der TL durch heißere Atmosphäre oder Plasma direkt über der bestrahlten Stelle.
2. Die TL ist eine Streulinse, da  $(n_{\text{heiß}} \wedge n_{\text{plasma}}) < n_{\text{kühl}}$ .
3. Bei  $s_{\text{F-O}} = 0,40$  mm bildet sich ein zweiter Fokus  $F_{\text{TL}}$  auf der Probenoberfläche.
4. Die TL bildet sich bei  $s_{\text{F-O}} > 0,40$  mm über der Probenoberfläche.

Abbildung 4.14 zeigt, welchen Einfluss eine thermische Linse auf die SGW-Bildung hätte.



**Abb. 4.14:** Effekt einer thermischen Linse (TL) auf die Erzeugung von SGW bei unterschiedlichen  $s_{F-O}$ .

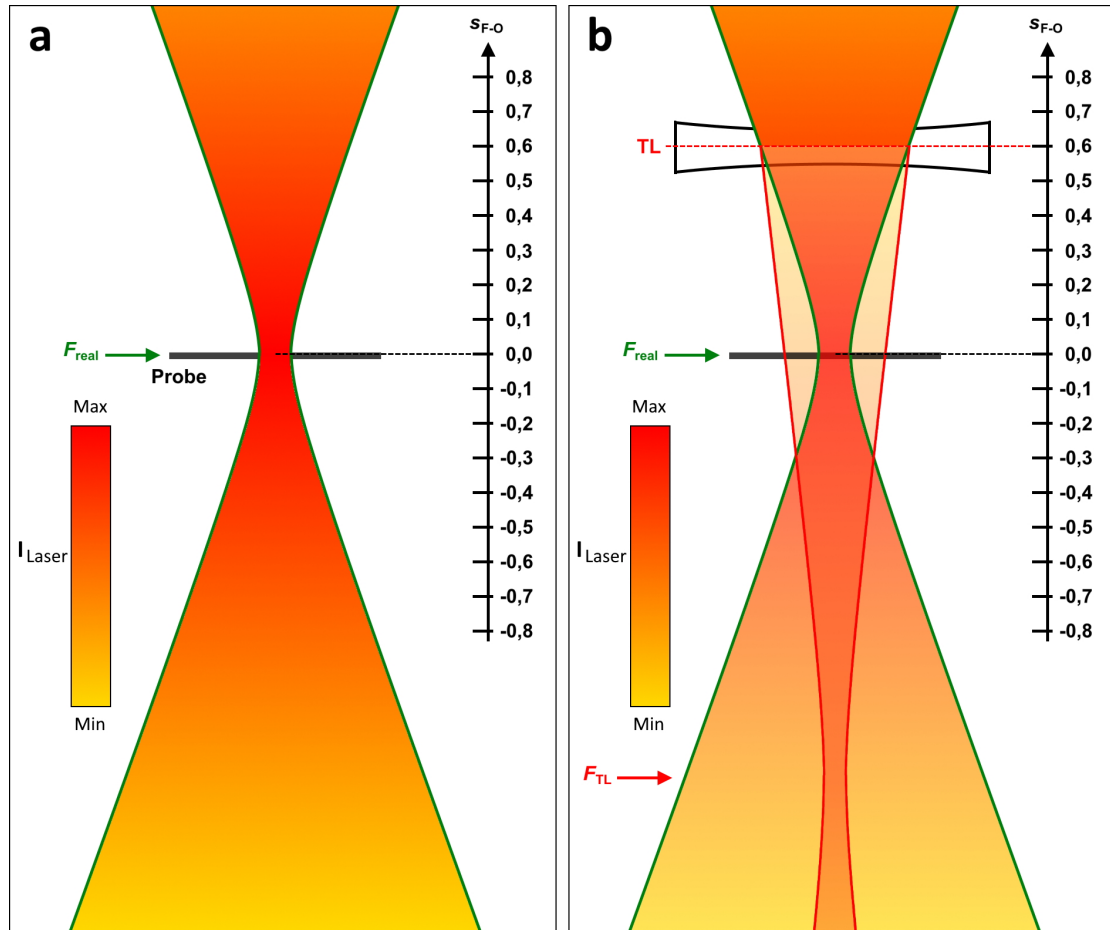
**a-c)** Strahlverlauf ohne den Einfluss einer thermischen Linse. Bei  $s_{F-O} = 0,0 \text{ mm}$  befindet sich der Fokus  $F_{\text{real}}$  direkt auf der Probenoberfläche.

**d-f)** Veränderter Strahlverlauf (rot) durch den Einfluss einer thermischen Linse ( $s_{F-O}(\text{TL}) = 0,6 \text{ mm}$ ).

**a+d)**  $s_{F-O} = 0,0 \text{ mm}$ . **b+e)**  $s_{F-O} = -0,2 \text{ mm}$ . **c+f)**  $s_{F-O} = -0,8 \text{ mm}$ .

Da die SGW-Erzeugung nur gelingt, wenn der Fokus auf der Probenoberfläche oder darunter liegt ( $s_{F-O} \leq 0,00 \text{ mm}$ ), wird kein zweiter Fokus  $F_{\text{TL}}$  auf oder über der Probenoberfläche gebildet. Die TL bricht die Strahlen nach außen, wodurch der erzeugte  $F_{\text{TL}}$  unterhalb des  $F_{\text{real}}$  liegen muss. Ein Teil der Strahlen wird in  $F_{\text{TL}}$  gebündelt, wodurch die Strahlintensität im Zentrum von  $F_{\text{real}}$  verringert wird. Gleichzeitig wird die Strahlintensität im Zentrum an der Position des  $F_{\text{TL}}$  erhöht. Durch eine Überlagerung der Intensitätsgradienten beider Foki wird im

$s_{F-O}$ -Bereich zwischen den beiden Foki ein schwächerer Intensitätsgradient erzeugt, als es mit nur einem Fokus der Fall wäre. Abbildung 4.15 veranschaulicht den veränderten Intensitätsgradienten.



**Abb. 4.15:** Veränderter Intensitätsgradient durch den Einfluss einer thermischen Linse.

**a)** Strahlverlauf und Intensitätsgradient ohne den Einfluss einer thermischen Linse für  $s_{F-O} = 0,00$  mm. Der Fokus  $F_{real}$  befindet sich direkt auf der Probenoberfläche.

**b)** Veränderter Strahlverlauf und Intensitätsgradient durch den Einfluss einer thermischen Linse bei  $s_{F-O}(TL) = 0,60$  mm. Es bildet sich ein zweiter Fokus  $F_{TL}$  unterhalb des ersten Fokus  $F_{real}$  im negativen  $s_{F-O}$ -Bereich.

Durch die Bildung eines zweiten Fokus bleibt die Laserintensität im Strahlzentrum über einen größeren  $s_{F-O}$ -Bereich konstant (Abbildung 4.15b), als es mit nur einem Fokus der Fall wäre (Abbildung 4.15a). Dies bedeutet weiterhin, dass die Gradientenkraft in diesem Bereich weniger stark abnimmt als erwartet, da diese direkt

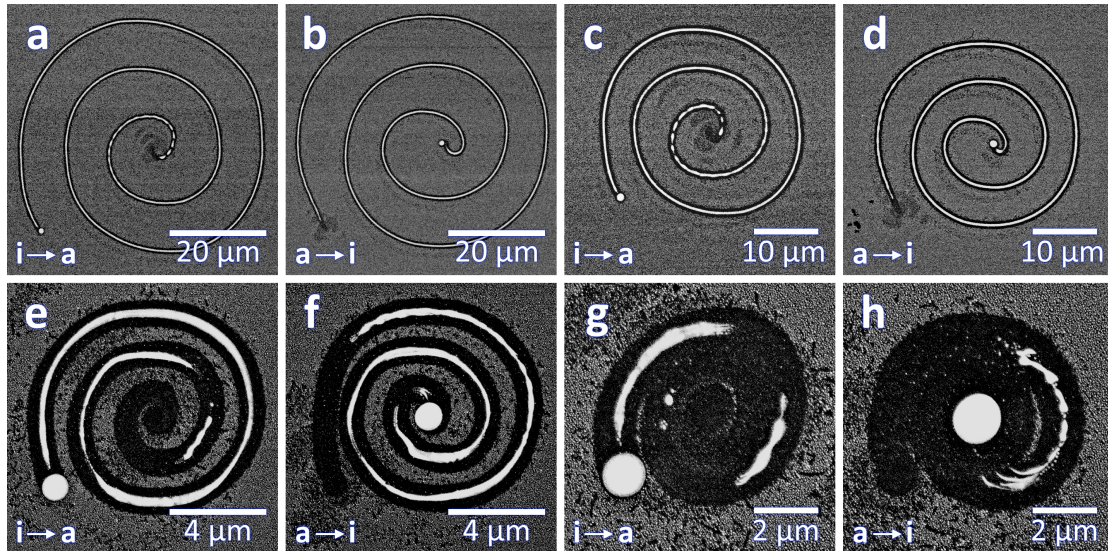


proportional zum Gradienten der Laserintensität ist. Die Gradientenkraft ist die attraktive Kraft der optischen Pinzette und wirkt in Richtung höchster Laserintensität (Fokus bzw. Strahlmitte). Die bisherigen Ergebnisse wiesen darauf hin, dass die Gradientenkraft maßgeblich für die Bildung der SGW verantwortlich ist. Eine verhältnismäßig konstante Gradientenkraft könnte somit die beobachtete, geringe Breitenänderung bzw. Änderung des Einflussbereiches (siehe Abschnitt 4.2.2) der SGW bei Variation des  $s_{F-O}$  erklären.

### 4.2.2 SGW-Eigenschaften

#### Einflussbereich der SGW

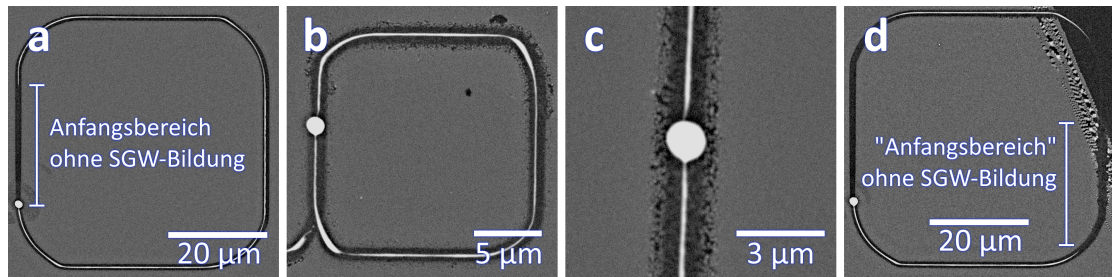
Mit Hilfe des gewählten Lasersystems und des darin verbauten Nanopräzisions-tisches ist es möglich, die zu belasernden Bereiche sehr genau anzusteuern und Strukturen wie z.B. Spiralen oder Vierecke zu erzeugen. Im vorherigen Abschnitt wurde bereits ein Bereich neben der SGW beobachtet, aus dem die aufgesputterte Goldschicht „eingesammelt“ wurde und die SGW bildete. Um den Einflussbereich dieser attraktiven Kraft und ihren Einfluss auf bereits bestehende SGW beschreiben zu können, können Spiralen mit unterschiedlichen Durchmessern, sowie geschlossene Strukturen wie Vierecke verwendet werden. Abbildung 4.16 zeigt zunächst SEM-Aufnahmen von SGW-Spiralen unterschiedlicher Durchmesser und Schreibrichtung.



**Abb. 4.16:** SGW-Spiralen unterschiedlicher Größe und Schreibrichtung. Die verwendete Schreibrichtung ist in der unteren linken Ecke dargestellt (innen nach außen:  $i \rightarrow a$ ; außen nach innen:  $a \rightarrow i$ ).

Auffällig ist, dass bei allen Spiralen eine Goldansammlung erkennbar ist. Diese Goldansammlung bildet sich immer am Ende einer SGW bzw. am Ende des belasteten Bereichs. Für Spiralen mit kleinem Durchmesser (Abbildung 4.16e+f) konnte außerdem ein Anfangsbereich beobachtet werden, in dem keine SGW gebildet wurden. Auch dieses Phänomen haben alle aus SGW erzeugten Strukturen gemeinsam. Spiralen mit sehr kleinen Kurvenradien (Abbildung 4.16g+h) und Abständen zwischen den SGW von weniger als ca.  $1,5 \mu\text{m}$  zeigen eine Beeinflussung der Goldlinien untereinander. Der später erzeugte Abschnitt der SGW zieht dabei das Gold des vorher erzeugten SGW-Abschnitts an sich, wodurch dieser teilweise oder komplett verschwindet. Der Einflussbereich der SGW, in dem das Gold angezogen werden kann, ist dabei als schwarzer Bereich in den Bildern erkennbar, in dem sich keine oder nur sehr wenige Goldpartikel befinden.

Auch bei SGW-Vierecken konnten die beschriebene Goldansammlung sowie ein Anfangsbereich ohne SGW-Bildung beobachtet werden. Abbildung 4.17 zeigt die geschriebenen SGW-Vierecke.



**Abb. 4.17:** SGW-Vierecke mit abgerundeten Ecken.

- a) Start- und Endpunkt identisch. Im Anfangsbereich bildet sich keine SGW.
- b) Start- und Endpunkt unterschiedlich. Der Anfangsbereich ohne SGW-Bildung befindet sich außerhalb des Vierecks.
- c) Vergrößerung des Endpunktes von b). Die gebildete Goldansammlung ist über eine dünne SGW mit dem Rest des Vierecks verbunden.
- d) SGW-Viereck, welches zum Teil über einen Bereich ohne Gold (oben rechts) geschrieben wurde.

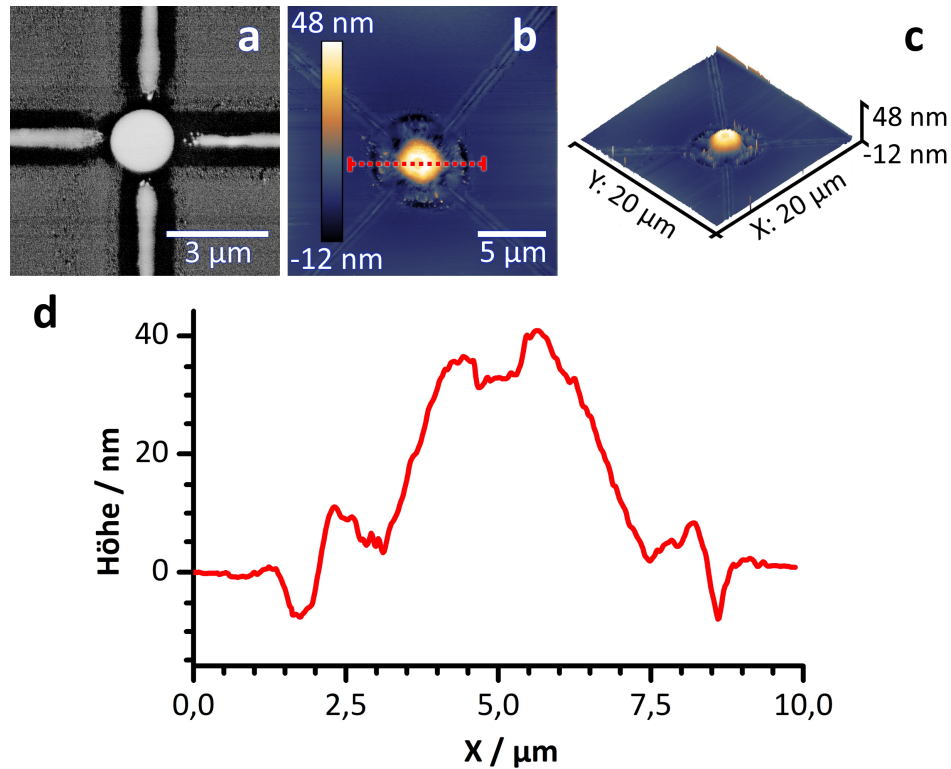
Vierecke, bei denen Start- und Endpunkt identisch waren (Abbildung 4.17a), bildeten aufgrund der fehlenden SGW im Anfangsbereich keine geschlossenen Strukturen. Um den Anfangsbereich ohne SGW-Bildung zu umgehen, wurden Vierecke mit vorgelagertem Startpunkt außerhalb des Vierecks geschrieben (Abbildung 4.17b). Mit Hilfe dieser Technik konnten Vierecke erzeugt werden, bei denen der Endpunkt, erkennbar anhand der Goldansammlung, mit der SGW des restlichen Vierecks verbunden ist (Abbildung 4.17c). Vierecke, die über einen Bereich ohne Gold geschrieben wurden (Abbildung 4.17d), weisen auf einen weiteren Aspekt der SGW-Bildung hin. Analog zum Anfangsbereich ohne SGW-Bildung, wurden bei diesen Vierecken nach Eintritt in den goldlosen Bereich keine SGW mehr gebildet. Interessanterweise stoppt die SGW-Bildung nicht abrupt an der Grenze zum goldlosen Bereich, sondern erst kurz danach. Beim Wiedereintritt in den mit Gold besputterten Bereich wird wiederum eine gewisse Strecke benötigt, bevor eine SGW gebildet wird.

Diese Beobachtungen der Goldansammlung sowie des Anfangsbereichs ohne SGW-Bildung lassen auf den zugrundeliegenden Mechanismus der optischen Pinzette schließen. Zu Beginn der SGW zieht die optische Pinzette innerhalb eines bestimmten Einflussbereiches Gold zusammen und sammelt dieses ein. In diesem

Anfangsbereich wird keine SGW erzeugt. Sobald eine bestimmte Goldmenge aufgenommen wurde, ist die optische Pinzette nicht mehr in der Lage alles Gold zu halten und verliert einen Teil, woraufhin sich eine SGW bildet. Wird das gesammelte Gold in der optischen Pinzette über einen goldlosen Bereich gebracht, verliert die optische Pinzette Gold und erzeugt eine SGW, bis die Grenzmenge des maximal transportierbaren Goldes wieder unterschritten ist. Eine anschließende Bewegung der optischen Pinzette über einen mit Gold besputterten Bereich gleicht einem Neustart der SGW, bei dem von der optischen Pinzette Gold eingesammelt und keine Goldlinie erzeugt wird. Endet die Energiezufuhr durch Abschalten des Lasers, endet auch die anziehende Kraft der optischen Pinzette auf das Gold und das restliche in der Pinzette gesammelte Gold bleibt als Goldansammlung zurück. Dabei macht es für die Bildung einer Goldansammlung keinen Unterschied, ob die optische Pinzette zuvor über einen mit Gold besputterten oder unbesputterten Bereich bewegt wurde, eine Goldansammlung bildet sich in beiden Fällen. In hier nicht gezeigten Experimenten konnten auch Goldansammlungen erzeugt werden, nachdem der Laserstrahl mehrere Millimeter über einen goldlosen Bereich bewegt wurde.

### **Goldansammlung der SGW**

In Folgeexperimenten wurde die Goldansammlung genauer untersucht. Da in SEM-Bildern lediglich die Topologie (2D) und Materialzusammensetzung der Goldansammlung bestimmt werden konnten, wurden auch hier AFM-Aufnahmen der Probe angefertigt. Um Bildfehler während der AFM-Messung zu vermeiden wurden die Proben vorher mit Königswasser gewaschen. Abbildung 4.18 zeigt eine SEM-Aufnahme der Goldansammlung vor bzw. AFM-Aufnahmen nach dem Waschen mit Königswasser.



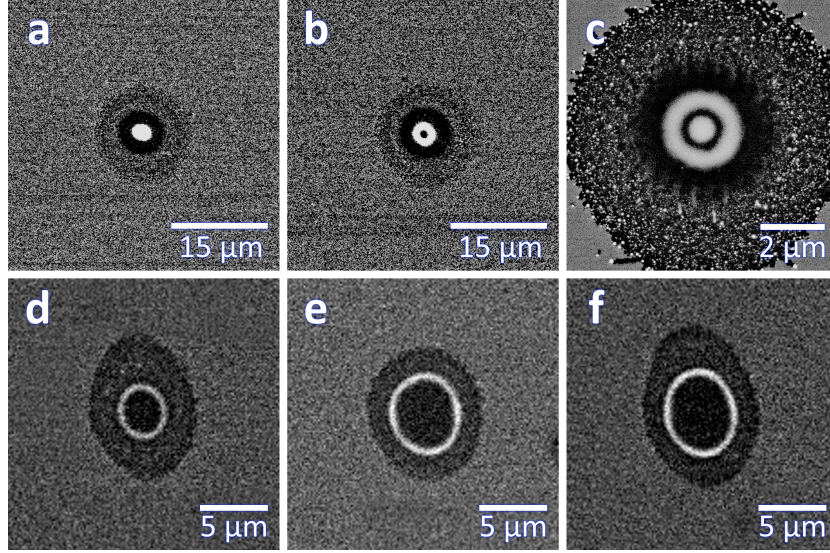
**Abb. 4.18:** Goldansammlung vor und nach dem Waschen mit Königswasser.  
**a)** SEM-Bild (Materialkontrast) einer Goldansammlung am Ende von vier konvergenten SGW vor dem Waschen mit Königswasser. Die Topologie (2D) der Goldansammlung ist sphärisch.  
**b)** AFM-Aufnahme einer Goldansammlung nach dem Waschen mit Königswasser mit Markierung des Höhenprofils für d).  
**c)** 3D-Darstellung der AFM-Aufnahme aus b). In der Mitte der Goldansammlung ist eine Vertiefung zu erkennen.  
**d)** Höhenprofil der Goldansammlung aus b).

Die Goldansammlung besitzt eine Höhe von 40 nm oberhalb der Oberfläche und ist somit ähnlich hoch wie die SGW. Der Durchmesser der Goldansammlung variiert zwischen 500 nm und 7,0  $\mu\text{m}$ , je nach Länge der SGW und damit der Menge des gesammelten Goldes sowie den Parametern, welche für die SGW-Erzeugung verwendet wurden. Parameter, die breitere SGW erzeugen, erzeugen auch größere Goldansammlungen. Weiterhin ist der Durchmesser der Goldansammlung unabhängig von der Anzahl der zusammenlaufenden SGW. Die in Abbildung 4.18a gezeigte Goldansammlung würde dementsprechend den gleichen Durchmesser auf-

weisen, auch wenn sie nur von einer SGW erzeugt worden wäre. Der maximale Durchmesser der Goldansammlung wird bestimmt durch den Einflussbereich der optischen Pinzette (schwarzer Bereich in Abbildung 4.18a) und ist somit unabhängig von der Länge der SGW, solange eine bestimmte Mindestlänge überschritten ist. Interessant ist außerdem der Unterschied zwischen Materialkontrast in der BSE-Aufnahme (Abbildung 4.18a) und Topographie in der AFM-Aufnahme (Abbildung 4.18b+c). Im Höhenprofil der AFM-Aufnahmen (Abbildung 4.18d) ist zu erkennen, dass die Goldansammlung eine kleine Vertiefung von 7 nm tiefe und ca. 1  $\mu\text{m}$  im Durchmesser in der Mitte der Ansammlung aufweist. Auch diese Vertiefung spricht für den Mechanismus der optischen Pinzette. Die Gradientenkraft, als attraktive Kraft der optischen Pinzette, ist im Bereich der Strahlmitte am stärksten, in der Strahlmitte selbst jedoch gleich Null. Repulsive Kräfte, wie die Streukraft der optischen Pinzette oder die Thermophorese und die positive Photophorese, sind direkt im Strahlzentrum am stärksten. Die Menge an Gold, welche die Goldansammlung formt, ist das Maximum, welches von der Gradientenkraft eingesammelt und bewegt werden kann. Zusätzlich besitzt die Goldansammlung eine stärkere Absorption als die vergleichsweise dünn-besputterte Goldschicht. Diese erhöhte Absorption führt zu einer Verstärkung der repulsiven Kräfte, welche der attraktiven Kraft entgegenwirken und dadurch die Bildung der Vertiefung im Strahlzentrum hervorrufen.

Goldansammlungen können auch unabhängig von der Erzeugung der SGW generiert werden, indem Punkt-Belaserungen durchgeführt werden. Dabei wird die Probenoberfläche für eine bestimmte Zeit  $t$  bestrahlt, ohne den Laserstrahl zu bewegen. Zusätzlich zu den bereits beschriebenen Goldansammlungen konnte auch die Bildung von Goldringen beobachtet werden. Abbildung 4.19 zeigt die erhaltenen Goldansammlungen und -ringe der Punkt-Experimente.





**Abb. 4.19:** Aus Punkt-Belaserungen erhaltene Goldansammlungen und -ringe.  
**a-c)** Goldansammlung, Goldring und Goldring mit innenliegender Goldansammlung bei  $s_{F-O} = 0,40$  mm und  $f = 300$  kHz.  
**a)**  $F_p = 3,78 \text{ J/cm}^2$ ,  $t = 10$  ms. **b)**  $F_p = 4,47 \text{ J/cm}^2$ ,  $t = 10$  ms.  
**c)**  $F_p = 4,44 \text{ J/cm}^2$ ,  $t = 1$  ms.  
**d-f)** Goldringe bei  $f = 50$  kHz.  
**d)**  $s_{F-O} = 0,55$  mm,  $F_p = 2,93 \text{ J/cm}^2$ ,  $t = 1$  ms.  
**e)**  $s_{F-O} = 0,45$  mm,  $F_p = 8,38 \text{ J/cm}^2$ ,  $t = 1$  ms.  
**f)**  $s_{F-O} = 0,55$  mm,  $F_p = 3,82 \text{ J/cm}^2$ ,  $t = 1$  ms.

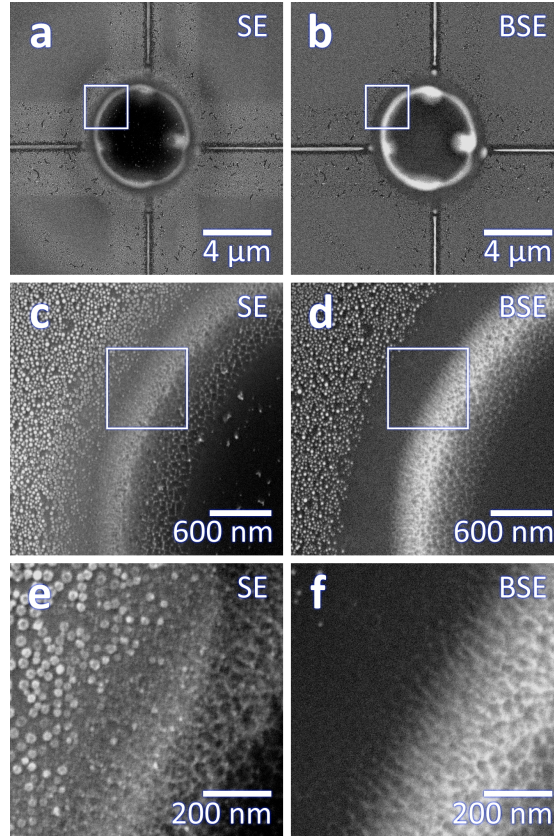
Je nach  $F_p$  und Bestrahlungszeit konnten Goldansammlungen, Goldringe oder Mischvarianten von Goldringen mit einer innenliegenden Goldansammlung erzeugt werden. Goldansammlungen konnten bei identischen Parametern wie SGW hergestellt werden (siehe Abbildung 4.10, 300 kHz). Zusätzlich wurde die Bildung von Goldansammlungen auch im positiven  $s_{F-O}$ -Bereich beobachtet (Abbildung 4.19a), bei Parameterkombinationen, in denen bei Linien-Experimenten LIPSS beobachtet wurden (siehe Abbildung 4.2, 300 kHz). Höhere  $F_p$  ( $> 4,00 \text{ J/cm}^2$ ) erzeugten bei identischen  $s_{F-O}$  und Bestrahlungszeiten Goldringe mit Durchmessern zwischen  $2,0 \mu\text{m}$  und  $3,0 \mu\text{m}$  (Abbildung 4.19b). Bei sehr kurzen Bestrahlungszeiten von 1 ms (Anzahl einfallender Pulse  $N_p^* = 300$ ) und hohen  $F_p$  ( $> 4,00 \text{ J/cm}^2$ ) wurde die Bildung von Goldringen mit innenliegender Goldansammlung beobachtet (Abbildung 4.19c).

Analog zu den Goldringen bei 300 kHz konnten auch bei 50 kHz Goldringe erzeugt werden (Abbildung 4.19d-f). Auch diese Goldringe konnten in einem Parameterbereich erzeugt werden, der dem der LIPSS-Erzeugung gleicht (siehe Abbildung 4.2, 50 kHz). Im Gegensatz zu LIPSS bei Linien-Experimenten konnten Goldringe jedoch zusätzlich in einem  $s_{F-O}$ -Bereich (0,40 mm bis 0,70 mm) erzeugt werden. In diesem Bereich wurden bei Linien-Experimenten aufgrund des zu hohen Energieeintrags eine Zerstörung der Oberfläche beobachtet. Aufgrund der kurzen Bestrahlungszeit und damit einhergehenden geringen Anzahl einfallender Pulse  $N_p^*$  (50 bis 500) wurde der Energieeintrag verringert. Die generierten Goldringe erreichen Durchmesser zwischen  $1,7\ \mu\text{m}$  und  $6,1\ \mu\text{m}$ . Bei geringeren  $s_{F-O}$  bzw. höheren  $F_p$  erhöht sich der Durchmesser der Goldringe (Abbildung 4.19e-f). Höhere Energieeinträge durch längere Bestrahlungszeiten führen zur Ausbildung von Ondulationen im Ring, welche letztlich zu einem Zerfall des Goldrings in einzelne Goldansammlungen führen. Eine mögliche Erklärung dieses Phänomens sind die stärkeren repulsiven Kräfte, hervorgerufen durch ebendiese höheren Energieeinträge in die Oberfläche. Durch Thermophorese oder positive Photophorese wird das Gold aus der Strahlmitte verdrängt, wodurch sich der Durchmesser der erzeugten Ringe vergrößert. Die Ringe werden instabil und zerfallen in Goldansammlungen, ähnlich dem Dewetting bei Metaldünnschichten aufgrund von Rayleigh-Plateau-Instabilität.<sup>[120]</sup>

Die erzeugten Strukturen bei  $f = 300\ \text{kHz}$  stellen eine Besonderheit dar, da sie Parameter miteinander kombinieren, die entweder für die Bildung von SGW (hohe  $f$ ) oder LIPSS (positiver  $s_{F-O}$ -Bereich) vorteilhaft sind. Auch die Bildung der Goldringe bei  $f = 50\ \text{kHz}$  kann als ein Spezialfall angesehen werden, da trotz vergleichsweise hohen  $F_p$  keine Zerstörung der Oberfläche eingetreten ist, sondern klar definierte Strukturen erzeugt wurden. Eine genauere Betrachtung des Mechanismus dieser Strukturen findet im Abschnitt 4.3 statt.



Die bisherigen Experimente zeigen, dass SGW sich gegenseitig beeinflussen und eine Bildung von Goldringen möglich ist. Diese Beobachtungen wurden verwendet, um Goldansammlungen am Ende einer SGW erneut zu Bestrahlen und dadurch Goldringe zu erzeugen. Durch die Aufweitung der Goldansammlungen wurde versucht, die Lücke zwischen SGW und Goldansammlung zu schließen und somit zwei oder mehrere SGW-Strukturen miteinander zu verbinden. Für diese Experimente wurden vier zusammenlaufende SGW verwendet, wie sie bereits in Abbildung 4.18a gezeigt wurden. Die nachträgliche Bestrahlung der Goldansammlung wurde mit Parametern, ähnlich denen in Abbildungen 4.19d-f ( $f = 50$  kHz, positive  $s_{\text{F-O}}$ ,  $t = 1$  ms) durchgeführt, um möglichst große Goldringe zu erzeugen. Abbildung 4.20 zeigt die erhaltenen Strukturen, welche durch nachträgliches Bestrahlen von Goldansammlungen generiert werden konnten.



**Abb. 4.20:** Nachträgliche Bestrahlung einer Goldansammlung für 1 ms mit  $s_{F-O} = 0,45$  mm,  $f = 50$  kHz und  $F_p = 6,54$  J/cm<sup>2</sup>.

**a+b)** SE- und BSE-Aufnahmen der erhaltenen Struktur.

**c+d)** Vergrößerung der SE- und BSE-Aufnahmen aus a) und b).

**e+f)** Vergrößerung der SE- und BSE-Aufnahmen aus c) und d).

Wie in den Bildern 4.20a-f zu sehen ist, konnte die Lücke zwischen SGW und Goldring nicht geschlossen werden. Stattdessen bildete sich ein Bereich von ca. 500 nm außerhalb des Goldrings, aus dem die Goldpartikel in den Ring hineingezogen wurden (Abbildung 4.20d+f). Der Durchmesser des Einflussbereichs des Goldrings beträgt damit  $\sim 6,64$  μm. Zu beachten ist dabei, dass die bestrahlte Goldansammlung lediglich einen Durchmesser von 550 nm und einen Einflussbereich von ca. 600 nm besaß. Zu erkennen sind weiterhin Verdickungen des Goldrings an den Stellen, an denen sich zuvor die Enden der SGW befanden. Bei genauerer Betrachtung des Grenzbereichs zwischen Goldring und umliegendem Partikelfeld können Unterschiede der Topologie (Abbildung 4.20e) und des Materi-

alkontrasts (Abbildung 4.20f) ausgemacht werden. Die umliegenden Goldpartikel, welche durch Dewetting der besputterten Goldschicht erzeugt wurden, wurden bei der erneuten Bestrahlung in den Goldring hineingezogen. In der Topologie sind die früheren Plätze dieser Goldpartikel noch zu erkennen, da sie durch ihre hohe Temperatur die Oberfläche der Probe beschädigt haben.

Eine quantitative Beschreibung der wirkenden Kräfte gestaltet sich an dieser Stelle als schwierig. Die meisten Berechnungen und Simulationen für Partikel, die mit der optischen Pinzette eingefangen werden, beziehen sich auf freischwebende oder in Lösung dispergierte Partikel. Weiterhin werden fast ausschließlich Lasersysteme verwendet, deren Strahlungsquelle ein CW-Laser (für biologische Proben oder Zellmaterial) oder Ultrakurzpulslaser (für Mikro- und Nanopartikel) ist. In beiden Fällen wird versucht, die auf das Teilchen ausgeübte thermische Energie zu reduzieren, um eine Zerstörung zu verhindern bzw. die Einflüsse durch repulsive Kräfte wie Thermophorese, Photophorese oder die Streukraft zu minimieren. Das in dieser Arbeit eingesetzte Lasersystem verwendet einen Nanosekundenlaser, wodurch thermische Effekte und repulsive Kräfte einen eindeutigen Einfluss auf die entstehenden Strukturen haben (siehe Abbildungen 4.19 und 4.20, Bildung von Goldringen). Ferner wird der Effekt der optischen Pinzette nicht wie üblich auf wenige Partikel untersucht, sondern auf eine, im besten Fall als partikulär zu beschreibende, Oberfläche. Durch thermische Effekte während der Strukturierung kommt es zum Dewetting der besputterten Oberfläche, wodurch Goldnanopartikel gebildet werden, die wiederum ein anderes Verhalten gegenüber der optischen Pinzette aufweisen. Hinzu kommt, dass zwischen Partikeln und der Oberfläche Adhäsionskräfte wirken, die durch die Gradientenkraft überwunden werden müssen. Nicht ausgeschlossen ist auch die Bildung einer Gold-Silicium-Legierung<sup>[121, 122]</sup> und deren Einfluss auf die Bildung der SGW. Experimente<sup>[123–126]</sup>, die einzelne Aspekte der beschriebenen Problematiken untersuchen, versuchen in der Regel thermische Effekte und Kräfte zu minimieren.

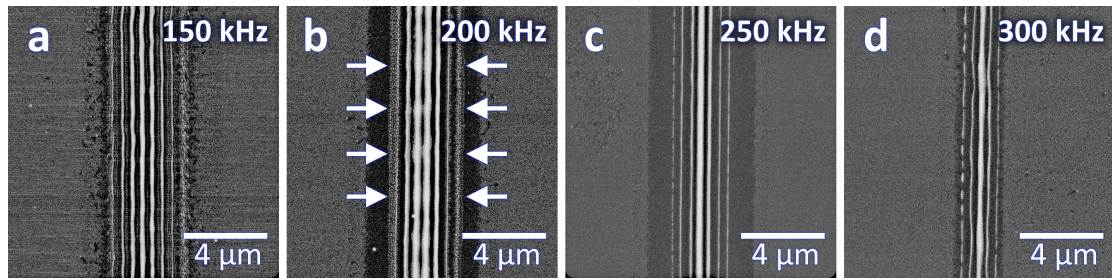
## 4.3 Zusammenhang zwischen LIPSS-Mechanismus und optischer Pinzette

In einigen Experimenten wurden bei der Erzeugung von LIPSS bzw. SGW Phänomene beobachtet, die zunächst nicht mit dem Entstehungsmechanismus einer der beiden Strukturen erklärt werden konnten. Dieser Abschnitt untersucht diese Phänomene genauer, unter dem Gesichtspunkt, dass sie ein Produkt beider Entstehungsmechanismen in unterschiedlichem Ausmaß sind. Außerdem werden weitere Strukturen vorgestellt, die ebenfalls ein Produkt aus LIPSS- und SGW-Mechanismus sind und hier als Übergangsstrukturen bezeichnet werden. Diese Strukturen können durch den Einfluss der attraktiven oder repulsiven Kräfte der optischen Pinzette auf LIPSS beschrieben werden und wurden dementsprechend attraktive bzw. repulsive LIPSS (A-LIPSS bzw. R-LIPSS) genannt. Weiterhin konnten Oberflächenstrukturen beobachtet werden, die Merkmale von LIPSS und SGW aufweisen, bei denen jedoch keine konkrete Zuordnung zu weiteren reproduzierbaren Strukturen (LIPSS, SGW, A-LIPSS, R-LIPSS) gemacht werden kann. Diese Strukturen entstehen bei Parameterkombinationen, die sich im Grenzbereich zwischen LIPSS, SGW, A-LIPSS und R-LIPSS bewegen und werden im Folgenden als Grenzstrukturen bezeichnet.

### 4.3.1 Leichte Beeinflussung der LIPSS-Bildung durch eine optische Pinzette

Bereits bei LIPSS konnte beobachtet werden, dass diese bei hohen  $f$  mit breiteren, ondulierten Drähten in der Strahlmitte erzeugt werden (Abbildung 4.3a+e). Diese Phänomene werden durch den Einfluss einer optischen Pinzette hervorgerufen. Eine Verstärkung der Gradientenkraft bei steigenden  $f$  führt zu einer verstärkten Ansammlung von Gold in der Strahlmitte, was zu einer Verbreiterung der mittleren LIPSS-Drähte und Ausdünnung der äußeren Drähte führt. Abbildung 4.21 zeigt den Einfluss einer stärker werdenden attraktiven Kraft auf die Bildung

von LIPSS.



**Abb. 4.21:** Leichte Beeinflussung der LIPSS durch eine optische Pinzette. Höhere Repetitionsraten  $f$  führen zu einer Verbreiterung der mittleren LIPSS-Drähte. Pfeile in b) markieren erhöhte Drahtbreiten durch Ondulationen.

a)  $f = 150 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,30 \text{ mm}$ ,  $F_p = 4,04 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 1521$ .

b)  $f = 200 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,50 \text{ mm}$ ,  $F_p = 2,01 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 3872$ .

c)  $f = 250 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,20 \text{ mm}$ ,  $F_p = 12,23 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 2240$ .

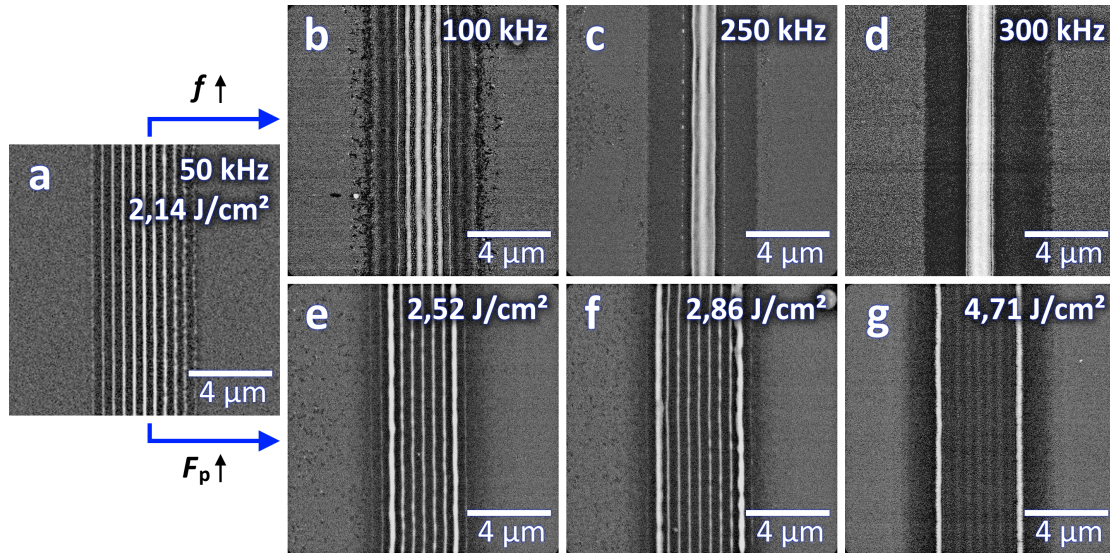
d)  $f = 300 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,15 \text{ mm}$ ,  $F_p = 5,09 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 2754$ .

Neben dem Phänomen der breiteren, mittleren LIPSS-Drähte kann ebenfalls die Ausbildung von Breitenondulationen auf den Einfluss einer optischen Pinzette zurückgeführt werden (Abbildung 4.21b). Der gleiche Effekt, welcher auch für die Ausbildung einer Goldansammlung bei SGW verantwortlich ist (siehe Abschnitt 4.2.2), bewirkt die Bildung von Breitenondulationen bei LIPSS-Drähten. Gold wird aus dem bestrahlten Bereich eingesammelt und in die Strahlmitte gezogen. Hierbei werden bei geeigneten Parametern zunächst LIPSS erzeugt und, je nach Stärke der attraktiven Kraft, teilweise breitere LIPSS-Drähte in der Strahlmitte generiert. Wird mehr Gold eingesammelt, als die optische Pinzette halten kann, wird ein Teil des Goldes fallengelassen. Die erhöhte Menge an Gold an dieser Stelle führt zu einer lokal erhöhten Drahtbreite und zur Ausbildung von Ondulationen.

### 4.3.2 Starke Beeinflussung der LIPSS-Bildung durch eine optische Pinzette

Die im vorherigen Abschnitt gezeigte leichte Beeinflussung der LIPSS und Bildung von breiteren und ondulierten LIPSS-Drähten kann bei geeigneten Parametern noch verstärkt werden. Ein stärkerer Einfluss der optischen Pinzette auf die LIPSS-

Bildung führt zur Entstehung SGW-ähnlicher Strukturen. Durch eine starke attraktive Kraft wird das Gold im Strahlzentrum konzentriert und überwiegt dem Bestreben der LIPSS-Entstehung. Wie bereits zuvor beobachtet, tritt auch dieser Fall verstärkt bei hohen  $f$  auf. Die im Vergleich zu Abbildungen 4.21c+d (leichte Beeinflussung) insgesamt höheren  $N_p$  führen zur Ausbildung von attraktiven LIPSS (A-LIPSS, Abbildung 4.22c+d). Abbildung 4.22 zeigt die Entstehung dieser A-LIPSS aus LIPSS mit steigender  $f$ , sowie die Entstehung von R-LIPSS bei steigender  $F_p$ . Die Variation weiterer, an dieser Stelle nicht diskutierter Parameter, spielt für die Entstehung von A- bzw. R-LIPSS eine untergeordnete Rolle. Betreffende Parameter werden dennoch angegeben, um einen Vergleich mit später dargestellten Strukturen zu ermöglichen.



**Abb. 4.22:** Starke Beeinflussung der LIPSS durch eine optische Pinzette. Bildung von attraktiven und repulsiven LIPSS (A- und R-LIPSS). Ausgehend von LIPSS führt eine höhere Repetitionsrate  $f$  zu A-LIPSS und eine höhere Pulsfluenz  $F_p$  zu R-LIPSS.

- a)  $f = 50 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,60 \text{ mm}$ ,  $F_p = 2,14 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 1359$ .
- b)  $f = 100 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,55 \text{ mm}$ ,  $F_p = 0,94 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 2518$ .
- c)  $f = 250 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,45 \text{ mm}$ ,  $F_p = 4,15 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 3725$ .
- d)  $f = 300 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,35 \text{ mm}$ ,  $F_p = 6,28 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 3684$ .
- e)  $f = 50 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,60 \text{ mm}$ ,  $F_p = 2,52 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 1359$ .
- f)  $f = 50 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,60 \text{ mm}$ ,  $F_p = 2,86 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 1359$ .
- g)  $f = 50 \text{ kHz}$ ,  $s_{F-O} = 0,45 \text{ mm}$ ,  $F_p = 4,71 \text{ J/cm}^2$ ,  $N_p = 745$ .

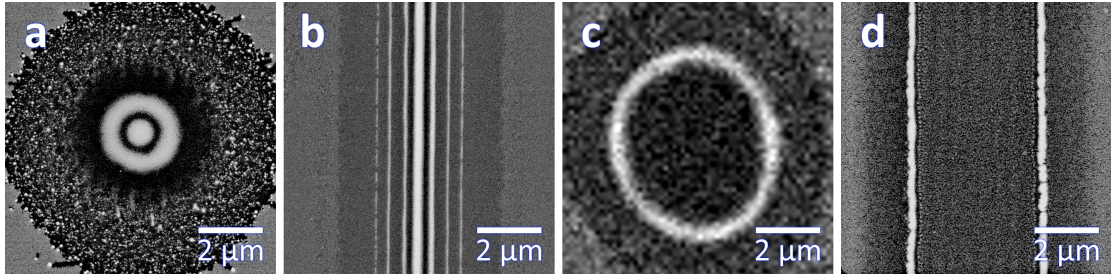
Die in Abbildung 4.22d gezeigte A-LIPSS-Linie wurde im Abschnitt der SGW nicht zu den SGW gezählt, da ihr Erscheinungsbild zwar dem der SGW ähnelt, ihre wesentlichen Merkmale jedoch unterschiedlich sind. Im Gegensatz zu den beschriebenen SGW, die im gesamten negativen  $s_{F-O}$ -Bereich (0,00 mm bis -0,80 mm) erzeugt werden können, entstehen A-LIPSS nur im positiven  $s_{F-O}$ -Bereich zwischen 0,25 mm und 0,60 mm. Weiterhin weisen A-LIPSS eine Breite von über  $1\text{ }\mu\text{m}$  ( $1,1\text{ }\mu\text{m} < d_{A-LIPSS} < 1,4\text{ }\mu\text{m}$ ) auf, wohingegen SGW maximal eine Breite von 715 nm erreichen. Weitere Parameter wie die hohe Pulsüberlappung  $N_p$  oder die hohe Repetitionsrate  $f$  gleichen denen, die für die SGW-Bildung benötigt werden. Im Vergleich zu LIPSS werden für A-LIPSS insgesamt höhere  $E_p$  bei ansonsten gleichen  $f$  und  $s_{F-O}$  benötigt. A-LIPSS stellen eine reproduzierbare Übergangsstruktur als Produkt aus LIPSS und (hauptsächlich) attraktiver Kraft einer optischen Pinzette dar.

Neben der Bildung von A-LIPSS durch die attraktive Kraft der optischen Pinzette, kann auch die Bildung von repulsiven LIPSS (R-LIPSS) beobachtet werden (Abbildung 4.22g). Durch repulsive Kräfte, wie Thermophorese, positive Photophorese und Streukraft, wird Material aus dem Strahlzentrum verdrängt. Eine stärker werdende repulsive Kraft wirkt dem Bestreben der LIPSS-Bildung entgegen und führt zur Ausbildung von R-LIPSS (Abbildung 4.22a, e-g). Markant für R-LIPSS ist, dass diese nur bei niedrigen Repetitionsraten  $f$  von 50 kHz oder 100 kHz in einem  $s_{F-O}$ -Bereich zwischen 0,20 mm und 0,70 mm erzeugt wurden. Diese Parameter ähneln ebenfalls denen, die auch für die LIPSS-Bildung verwendet wurden. Im Vergleich zu LIPSS wurden für R-LIPSS, analog zu A-LIPSS, insgesamt höhere Pulsenergien  $E_p$  (bzw.  $F_p$ ) bei ansonsten gleichen  $s_{F-O}$  und  $f$  benötigt (vgl. Abbildung 4.22e+f). Von LIPSS zu R-LIPSS gibt es somit einen fließenden Verlauf mit steigender  $E_p$ . Neben dem Bestreben zur LIPSS-Bildung wirkt auch die attraktive Kraft (Gradientenkraft) der Bildung von R-LIPSS durch repulsive Kräfte entgegen. Im Verlauf der R-LIPSS-Bildung (Abbildung 4.22e-g) kann eine Bildung von breiten LIPSS-Drähten und eine Verdrängung dieser aus dem Strahlen-



trum beobachtet werden. Für die Ausbildung dieser breiten LIPSS-Drähte ist, wie im Fall der A-LIPSS, die Gradientenkraft verantwortlich. Stärker werdende repulsive Kräfte überwiegen im Verlauf der R-LIPSS-Bildung die Gradientenkraft, bis schließlich kein Gold mehr im Strahlzentrum für die Bildung von LIPSS verbleibt. Bereits bei der SGW-Bildung wurde gezeigt, dass niedrige  $f$  die optische Pinzette destabilisieren, wodurch diese leichter von repulsiven Kräften überwunden werden kann. Ähnlich zu den A-LIPSS, stellen auch R-LIPSS eine reproduzierbare Übergangsstruktur als Produkt aus LIPSS und (hauptsächlich) repulsiven Kräften dar.

Weiterhin können die im Abschnitt 4.2.2 gezeigten Goldringe bei hohen ( $\geq 250$  kHz) und niedrigen ( $\leq 100$  kHz) Repetitionsraten  $f$  als Punktvariante der A- und R-LIPSS angesehen werden. Abbildung 4.23 veranschaulicht den Zusammenhang zwischen Goldringen und A- bzw. R-LIPSS.



**Abb. 4.23:** Bildung von Goldringen als Punktvariante von A- und R-LIPSS.

**a+b)** Goldringe bei hohen  $f$  repräsentieren Punktvariante der A-LIPSS.

**c+d)** Goldringe bei niedrigen  $f$  repräsentieren Punktvariante der R-LIPSS.

**a)**  $f = 300$  kHz,  $s_{F-O} = 0,40$  mm,  $F_p = 4,44$  J/cm<sup>2</sup>,  $N_p^* = 300$ .

**b)**  $f = 250$  kHz,  $s_{F-O} = 0,50$  mm,  $F_p = 2,63$  J/cm<sup>2</sup>,  $N_p = 4840$ .

**c)**  $f = 50$  kHz,  $s_{F-O} = 0,45$  mm,  $F_p = 8,38$  J/cm<sup>2</sup>,  $N_p^* = 50$ .

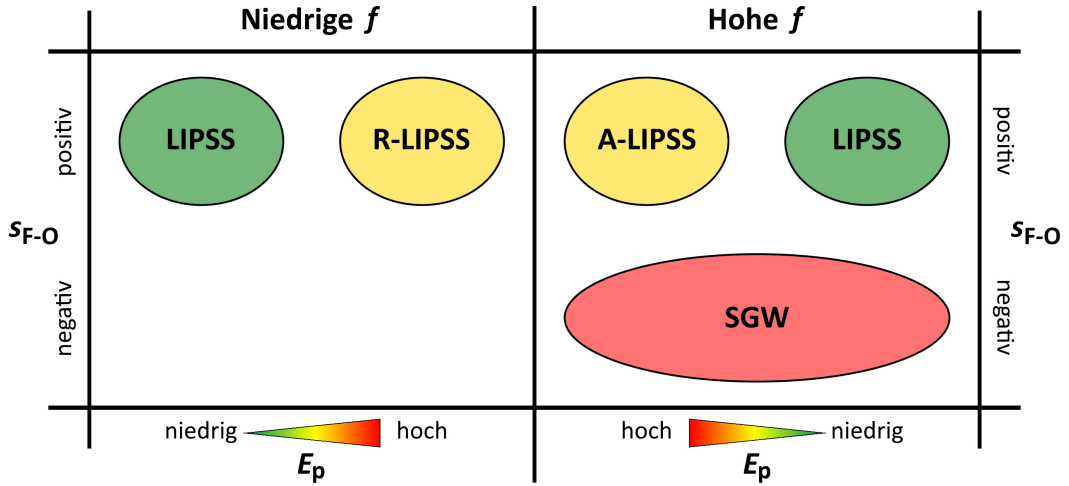
**d)**  $f = 50$  kHz,  $s_{F-O} = 0,50$  mm,  $F_p = 3,54$  J/cm<sup>2</sup>,  $N_p = 968$ .

Bei ähnlichen  $f$ ,  $s_{F-O}$  und  $F_p$ , sowie bei der Variation dieser Parameter, können bei Punkt- und Linienexperimenten vergleichbare Strukturen und Veränderungen dieser erhalten werden. Hohe  $f$  neigen in Punktexperimenten zur Ausbildung von Goldansammlungen oder kleinen Goldringen ( $2,0 \mu\text{m} < d < 3,0 \mu\text{m}$ ) mit innenliegender Goldansammlung (Abbildung 4.23a). Äquivalent dazu bilden sich



bei Liniexperimenten A-LIPSS, die in ihrem Erscheinungsbild einer einzelnen breiten SGW oder einer SGW mit zwei benachbarten schmälere SGW ähneln (Abbildung 4.23b). Niedrige  $f$  erzeugen größere Goldringe ( $1,7 \mu\text{m} < d < 6,1 \mu\text{m}$ ) in Punktexperimenten (Abbildung 4.23c) und R-LIPSS in Liniexperimenten (Abbildung 4.23d). Beide Strukturen entstehen durch eine Verdrängung des Goldes aus der Strahlmitte in die äußeren Zonen des bestrahlten Bereichs.

Die vorgestellten Strukturen der LIPSS und der SGW, sowie deren Übergangsstrukturen A-LIPSS und R-LIPSS haben gemein, dass sie bei definierten Parameterkombinationen reproduzierbar generiert werden können. Generell lässt sich der Zusammenhang zwischen LIPSS, SGW, A-LIPSS und R-LIPSS mit Hilfe der Parameter  $s_{\text{F-O}}$ ,  $f$  und  $E_{\text{p}}$  bzw.  $F_{\text{p}}$  erklären. Abbildung 4.24 zeigt den schematischen Zusammenhang der generierten Strukturen durch ebendiese Parameter. Da bei konstanten  $s_{\text{F-O}}$  und  $f$  eine hohe  $E_{\text{p}}$  auch einer hohen  $F_{\text{p}}$  entspricht (vice versa), sind diese Parameter für eine schematische Darstellung wie in Abbildung 4.24 äquivalent. Im Rahmen dieser vereinfachten Darstellung kann außerdem eine hohe  $f$  auch mit einer hohen Pulsüberlappung  $N_{\text{p}}$  gleichgesetzt werden.



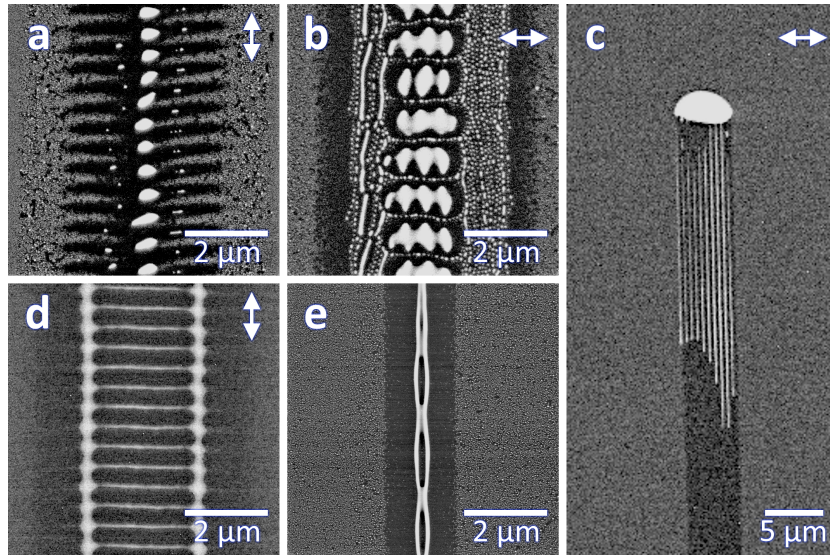
**Abb. 4.24:** Schematische Übersicht der parametrischen Zusammenhänge von LIPSS, R-LIPSS, A-LIPSS und SGW.

Bereits in den Abschnitten 4.1 (LIPSS) und 4.2 (SGW) konnte der parametrische

Zusammenhang zwischen LIPSS und SGW festgestellt werden. LIPSS können nur bei positiven  $s_{F-O}$  generiert werden, wohingegen SGW nur bei negativen  $s_{F-O}$  erzeugt werden konnten. Weiterhin können SGW tendenziell bei höheren  $f$  ( $> 200$  kHz) besser generiert werden. Eine LIPSS-Bildung hingegen gelingt sowohl bei niedrigen, als auch bei hohen  $f$ . Ein Vergleich zwischen LIPSS und den Übergangsstrukturen A-LIPSS und R-LIPSS zeigt, dass die Übergangsstrukturen bei insgesamt höheren  $E_p$  bzw.  $F_p$  als LIPSS generiert werden. Ähnlich zu den LIPSS können aber auch diese nur bei positiven  $s_{F-O}$  erzeugt werden. Eine Oberflächenstrukturierung bei negativen  $s_{F-O}$  und niedrigen  $f$ , ähnlich den SGW bei hohen  $s_{F-O}$  aber hohen  $f$ , konnte in keinem Fall beobachtet werden.

#### 4.3.3 Grenzstrukturen aus LIPSS, SGW, A-LIPSS und R-LIPSS

Aufgrund der gegenseitigen Beeinflussung von LIPSS und optischer Pinzette gibt es eine fließende Grenze zwischen LIPSS und SGW und deren reproduzierbaren Übergangsstrukturen A-LIPSS und R-LIPSS. Durch diesen fließenden Übergang entstehen Strukturen, die nicht eindeutig einer der definierten Strukturen zugeordnet werden können. Diese Grenzstrukturen weisen, je nach experimentellen Parametern, die Merkmale der hier definierten Strukturen (LIPSS, SGW, A-LIPSS, R-LIPSS) in unterschiedlich starker Ausprägung auf. Abbildung 4.25 zeigt einige Beispiele für diese Grenzstrukturen.



**Abb. 4.25:** Grenzstrukturen mit Merkmalen von LIPSS, SGW, A-LIPSS und R-LIPSS. Die Doppelpfeile zeigen die Laserpolarisation an.

- a)  $f = 50 \text{ kHz}$ ,  $s_{\text{F-O}} = 0,80 \text{ mm}$ ,  $F_p = 0,38 \text{ J/cm}^2$ ,  $v = 0,1 \text{ mm/s}$ ,  $N_p = 19520$ .
- b)  $f = 200 \text{ kHz}$ ,  $s_{\text{F-O}} = 0,55 \text{ mm}$ ,  $F_p = 1,31 \text{ J/cm}^2$ ,  $v = 1,0 \text{ mm/s}$ ,  $N_p = 5036$ .
- c)  $f = 300 \text{ kHz}$ ,  $s_{\text{F-O}} = 0,20 \text{ mm}$ ,  $F_p = 10,35 \text{ J/cm}^2$ ,  $v = 0,1 \text{ mm/s}$ ,  $N_p = 26880$ .
- d)  $f = 50 \text{ kHz}$ ,  $s_{\text{F-O}} = 0,65 \text{ mm}$ ,  $F_p = 3,20 \text{ J/cm}^2$ ,  $v = 1,0 \text{ mm/s}$ ,  $N_p = 1453$ .
- e)  $f = 300 \text{ kHz}$ ,  $s_{\text{F-O}} = -0,15 \text{ mm}$ ,  $F_p = 10,26 \text{ J/cm}^2$ ,  $v = 0,3 \text{ mm/s}$ ,  $N_p = 9480$ .

Eine Kombination aus niedrigen  $f$  (Trend: LIPSS) und hohen  $N_p$  (Trend: SGW) generiert in der Regel A-LIPSS. Bei der hier vorliegenden Kombination (Abbildung 4.25a) wird jedoch eine fischgrätenartige Struktur mit Merkmalen aus LIPSS („Gräten“) und SGW („Rückgrat“) gebildet. Der Abstand zwischen den Gräten entspricht im Mittel  $482 \text{ nm}$ , einem Abstand, der der erwarteten Periodizität  $\Lambda$  von LIPSS entspricht. Hohe  $f$  (Trend: SGW) und positive  $s_{\text{F-O}}$  (Trend: LIPSS) würden ebenfalls die Bildung von A-LIPSS erwarten lassen. Tatsächlich ähnelt die gebildete Struktur (Abbildung 4.25b) einer A-LIPSS-Linie in dem Sinne, dass sie aus mehreren zusammengezogenen, verbreiterten LIPSS-Drähten ( $\Lambda = 452 \text{ nm}$ ) besteht. Durch eine verhältnismäßig geringe  $f$  wird jedoch keine durchgehende Linie gebildet. Stattdessen kann ein Merkmal einer optischen Pinzette beobachtet werden, das Einsammeln und anschließende Fallenlassen von Gold. Die in periodischen Abständen fallengelassenen Goldansammlungen werden durch nachfolgende Pulse strukturiert und bilden rudimentäre LIPSS. Ein ähnliches Phänomen

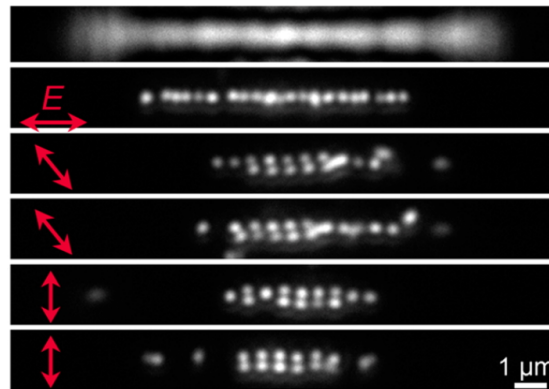
kann in Abbildung 4.25c beobachtet werden. Eine hohe  $f$  (Trend: SGW) in der Kombination mit einem positiven  $s_{F-O}$  (Trend: LIPSS) führt in der Regel zur Ausbildung von A-LIPSS. Durch eine sehr hohe  $N_p$  überwiegen jedoch die attraktiven Kräfte der optischen Pinzette dem Bestreben zur LIPSS-Bildung. Wie schon zuvor beobachtet (vgl. Abschnitt 4.2.2) ist die attraktive Kraft der optischen Pinzette in der Lage, eine gewissen Menge an Gold einzusammeln und über große Distanzen zu transportieren. Die maximale Menge an transportierbarem Gold wurde in Abbildung 4.25c gegen Ende der geschriebenen Linie erreicht, sodass ein Teil des Goldes fallengelassen und zu LIPSS strukturiert wurde. Die für SGW typische Goldansammlung kann am Ende der Linie ebenfalls beobachtet werden.

Grenzstrukturen im R-LIPSS-Bereich (Abbildung 4.25d) weisen ein leiterartiges Aussehen auf. Die „Sprossen“ dieser Leiter besitzen eine mittlere Periodizität  $\Lambda$  von 477 nm und sind damit auf den Einfluss der LIPSS zurückzuführen. Die „Holme“ der Leiter werden durch repulsive Kräfte gebildet, analog zu den verbreiterten Drähten der R-LIPSS. Diese Grenzstruktur ist vergleichbar mit den in Abbildung 4.22e+f (Bildung von R-LIPSS aus LIPSS) gezeigten Strukturen, jedoch bei 90° gedrehter Polarisierung. Letztlich können auch Grenzstrukturen mit Merkmalen von SGW und R-LIPSS (Abbildung 4.25e) bei negativen  $s_{F-O}$  (Trend: SGW) und hohen Energieeinträgen (Trend: R-LIPSS) beobachtet werden. Die erhöhte  $F_p$  führt zu einer Verstärkung der repulsiven Kräfte, welche stellenweise die attraktive Kraft überwiegt und zur Bildung von zopfartigen Grenzstrukturen führt.

#### 4.3.4 Optical binding force als Bindeglied zwischen LIPSS und optischer Pinzette

Die gezeigten Ergebnisse weisen darauf hin, dass LIPSS und SGW unterschiedlichen Mechanismen entspringen und sich gegenseitig beeinflussen können. Übergangs- und Grenzstrukturen weisen Merkmale beider Oberflächenstrukturen auf und zeigen diese gegenseitige Beeinflussung. Neben der Betrachtungsweise der

eigenständigen, voneinander verschiedenen Mechanismen, existieren in der Literatur auch Hinweise darauf, dass beide Phänomene auf dem gleichen Mechanismus basieren. Die Verknüpfung zwischen beiden Phänomenen könnte die optical binding force (deutsch: optische Bindekraft) darstellen.<sup>[127]</sup> Die optical binding force (OBF) wird neben der Gradienten- und Streukraft auch als die dritte Kraft der optischen Pinzette beschrieben, wenn mehrere Partikel gleichzeitig eingefangen werden.<sup>[128, 129]</sup> Ähnlich wie in der von Sipe formulierten Theorie zur Entstehung von LIPSS, basiert auch der Ursprung der OBF auf Interferenzen zwischen gebrochenen und gestreuten elektromagnetischen Wellen an Oberflächen. Mit Hilfe der OBF können Partikel in definierten Abständen zueinander eingefangen werden, wodurch beispielsweise mehrreihige Partikelanordnungen erzeugt werden können. Abbildung 4.26 zeigt ein Beispiel einer solchen Partikelanordnung.



**Abb. 4.26:** Mehrreihige Partikelanordnung durch optical binding force. Die Doppelpfeile geben die Polarisation des elektrischen Feldes an. Entnommen aus [130] (Originalbild).

Die durch die OBF angeordneten Partikelreihen sind empfindlich gegenüber der Polarisation des elektrischen Feldes und orientieren sich je nach Polarisation in unterschiedlichen Anordnungen.<sup>[130, 131]</sup> Weiterhin konnten für metallische Nanopartikel OBFs gemessen werden, die mehr als 20-mal größer waren als die wirkende Gradientenkraft.<sup>[132]</sup> Auch aus der Sicht der LIPSS gibt es Hinweise darauf, dass der zugrundeliegende Mechanismus auf der optischen Pinzette basiert. Xu *et al.*<sup>[133, 134]</sup> zeigten, dass durch eine Verringerung der Laserintensität die

#### 4.3 Zusammenhang zwischen LIPSS-Mechanismus und optischer Pinzette

LIPSS auf einen einzelnen Draht, in der Mitte des bestrahlten Bereichs, reduziert werden konnten. Wird dieses Ergebnis mit den in dieser Arbeit erzeugten SGW verglichen, zeigen sich interessante Analogien. In beiden Fällen wird durch eine hohe Laserintensität im Strahlzentrum eine Oberflächenstruktur in Form einer einzelnen Linie erzeugt.

Möglicherweise stellen LIPSS und SGW Phänomene des gleichen Mechanismus, der optischen Pinzette, dar. Eine höhere OBF führt zu einer Bildung von LIPSS, wohingegen eine stärkere Gradientenkraft zur Generierung von SGW führt. Bei ähnlichen Stärken bilden sich Übergangsstrukturen, wie die beobachteten A-LIPSS. Überwiegt eine der repulsiven Kräfte, werden R-LIPSS erzeugt.



## 5 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden der Zusammenhang und die Unterschiede zwischen dem treibenden Mechanismus der LIPSS und der optischen Pinzette untersucht und diskutiert. Dazu wurden zunächst LIPSS und SGW, eine Oberflächenstruktur, welche phänomenologisch auf dem Mechanismus der optischen Pinzette beruht, getrennt voneinander betrachtet. Neben LIPSS und SGW konnten auch Übergangsstrukturen (A-LIPSS und R-LIPSS) erzeugt werden, welche eine gegenseitige Beeinflussung von LIPSS und optischer Pinzette nahelegen. Letztlich wurden diese Strukturen unter den Aspekten betrachtet, dass sie das Ergebnis zweier unterschiedlicher Mechanismen oder eines einzelnen Mechanismus sein könnten.

Untersuchungen der LIPSS und der SGW zeigten, dass diese Strukturen eigene, sich nicht überschneidende Parameterbereiche besitzen, in denen sie erzeugt werden können. Diese Bereiche werden durch die Pulsfluenz  $F_p$ , dem Abstand zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$ , die Repetitionsrate des Laser  $f$  und die Pulsüberlappung  $N_p$  definiert. Der markanteste Unterschied ist die Abhängigkeit vom  $s_{F-O}$ . LIPSS bilden sich ausschließlich im positiven  $s_{F-O}$ -Bereich (Fokus oberhalb der Probenoberfläche) und SGW nur im negativen  $s_{F-O}$ -Bereich (Fokus unterhalb der Probenoberfläche). Weiterhin kann eine LIPSS-Bildung im gesamten untersuchten  $f$ -Bereich beobachtet werden, findet jedoch bevorzugt bei niedrigen  $f$  statt. SGW hingegen können erst bei höheren  $f$  erfolgreich generiert werden. Die mit der Repetitionsrate korrelierende Pulsüberlappung ist ein weiterer signifikanter Unterschied zwischen den Parameterbereichen von LIPSS und SGW.



Im Vergleich zu SGW, werden LIPSS bei deutlich geringeren Pulsüberlappungen generiert.

Die hier gezeigten SGW weisen die Besonderheit auf, als dass sie am Ende einer jeden erzeugten SGW eine Goldansammlung bilden. Das für die Bildung der SGW und der Goldansammlung benötigte Gold wird aus einem scharf begrenzten Einflussbereich eingesammelt und in die Strahlmitte transportiert. Gold, welches nicht für die Bildung der SGW verwendet wird, bildet die Goldansammlung am Ende der SGW. Der Parameterbereich, als auch die Eigenschaften zur Erzeugung einer Goldansammlung, sind Hinweise darauf, dass der zugrundeliegende Mechanismus der SGW der einer optischen Pinzette ist.

Im positiven  $s_{F-O}$ -Bereich konnten zudem Übergangsstrukturen erzeugt werden, die sich in einem ähnlichen Parameterbereich wie LIPSS bildeten. A-LIPSS besitzen das Aussehen von mehreren „in der Mitte zusammengezogenen“ LIPSS bzw. einer breiten SGW und entstehen voraussichtlich durch das Einwirken der attraktiven Kraft einer optischen Pinzette auf die Bildung von LIPSS. R-LIPSS weisen ein Erscheinungsbild von „nach Außen geschobenen“ LIPSS in Form von zwei breiten Golddrähten auf und sind mutmaßlich das Produkt aus repulsiven Kräften, welche die LIPSS-Bildung beeinflussen. Beide Übergangsstrukturen können im identischen  $s_{F-O}$ -Bereich wie LIPSS gebildet werden, benötigen jedoch insgesamt höhere  $E_p$ . A-LIPSS stellen dabei die LIPSS-Modifikation bei hohen  $f$  und R-LIPSS die Modifikation bei niedrigen  $f$  dar.

Die gegenseitige Beeinflussung von LIPSS und optischer Pinzette und die daraus resultierende Entstehung von Übergangsstrukturen, weist zunächst auf zwei voneinander unabhängige Mechanismen hin. Je nach Parameterkombination überwiegt die Bildung einer der gezeigten Strukturen, LIPSS, SGW, A-LIPSS oder R-LIPSS. Möglicherweise basiert die Bildung der LIPSS aber auch auf dem Zusammenwirken der attraktiven und repulsiven Kräfte einer optischen Pinzette, in Kombination mit der optical binding force. Die optical binding force wird als dritte

Kraft der optischen Pinzette bezeichnet und ist in der Lage Partikel, welche durch die attraktive Kraft der optischen Pinzette stabil gehalten werden, in Partikelreihen anzuordnen.

Eine quantitative Aussage über die wirkenden Kräfte kann in dieser Arbeit nicht getätigt werden. Der Einfluss diverser thermischer Effekte und Kräfte, wie z.B. Dewetting, Legierungsbildung, Thermophorese oder positiver Photophorese, macht eine Berechnung der wirkenden Gradienten- und Streukraft schwierig. Bei genauer Kenntnis über die Stärke dieser Kräfte könnten Simulationen (FDTD, FEM) Aufschluss darüber geben, welche Kräfte tatsächlich für die Bildung von LIPSS und SGW verantwortlich sind.





## 6 Anhang

**Tab. 6.1:** Gemessene Laserleistung  $P$  auf der Probenoberfläche bei Repetitionsraten  $f$  von 50 kHz bis 300 kHz in Abhängigkeit der Einstellung am  $\lambda/2$ -Plättchen sowie des Laseroutputs bei 63% und 100%.

$\lambda/2 / ^\circ$	$P / W$ 50 kHz		$P / W$ 100 kHz		$P / W$ 150 kHz	
	63%	100%	63%	100%	63%	100%
0	1,57	2,21	1,61	2,72	1,26	2,57
3	1,56	2,19	1,58	2,68	1,25	2,54
6	1,50	2,12	1,53	2,58	1,19	2,45
9	1,47	2,00	1,47	2,43	1,12	2,30
12	1,30	1,85	1,34	2,24	1,05	2,11
15	1,16	1,66	1,20	2,00	0,92	1,88
20	0,90	1,29	0,94	1,56	0,72	1,44
25	0,62	0,90	0,67	1,09	0,49	0,99
30	0,35	0,55	0,42	0,66	0,30	0,58
33	0,23	0,39	0,29	0,45	0,19	0,37
36	0,14	0,25	0,20	0,29	0,11	0,21
39	0,06	0,14	0,13	0,18	0,05	0,09
42	0,02	0,02	0,01	0,02	0,01	0,02
45	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

$\lambda/2 / ^\circ$	$P / W$ 200 kHz		$P / W$ 250 kHz		$P / W$ 300 kHz	
	63%	100%	63%	100%	63%	100%
0	1,18	2,44	1,06	2,29	0,96	2,23
3	1,17	2,42	1,04	2,27	0,95	2,20
6	1,12	2,33	1,02	2,17	0,90	2,14
9	1,06	2,19	0,95	2,03	0,85	2,01
12	0,98	2,01	0,86	1,88	0,77	1,85
15	0,88	1,79	0,76	1,67	0,69	1,64
20	0,68	1,36	0,58	1,28	0,54	1,26
25	0,46	0,95	0,40	0,88	0,38	0,87
30	0,28	0,55	0,24	0,52	0,21	0,51
33	0,18	0,36	0,15	0,33	0,14	0,33
36	0,10	0,19	0,08	0,18	0,07	0,19
39	0,05	0,08	0,03	0,08	0,03	0,09
42	0,01	0,02	0,01	0,02	0,01	0,03
45	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

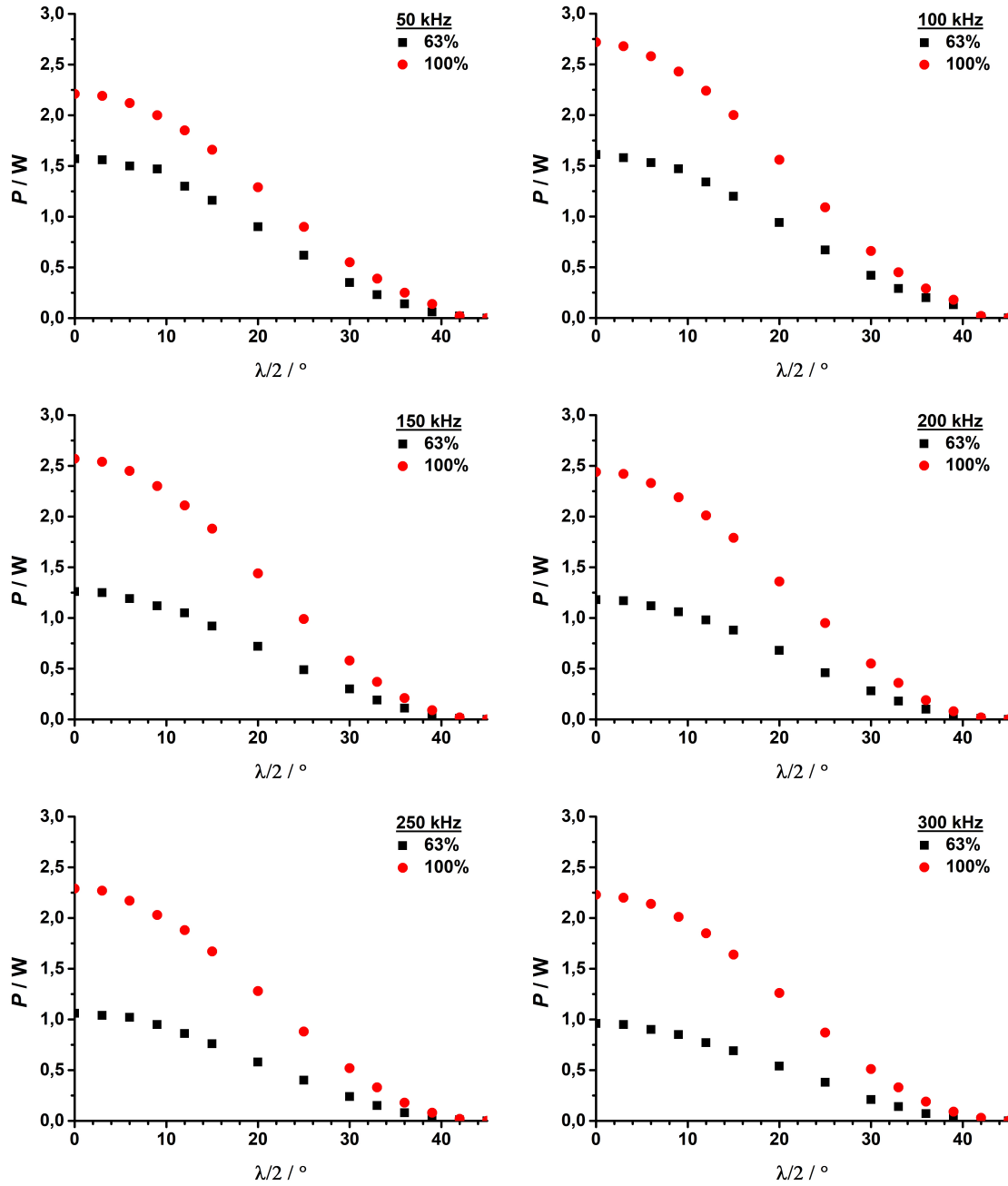


Abb. 6.1: Graphische Auftragung der gemessenen Laserleistung  $P$  auf der Probenoberfläche bei Repetitionsraten  $f$  von 50 kHz bis 300 kHz in Abhängigkeit der Einstellung am  $\lambda/2$ -Plättchen sowie des Laseroutputs bei 63% und 100%.

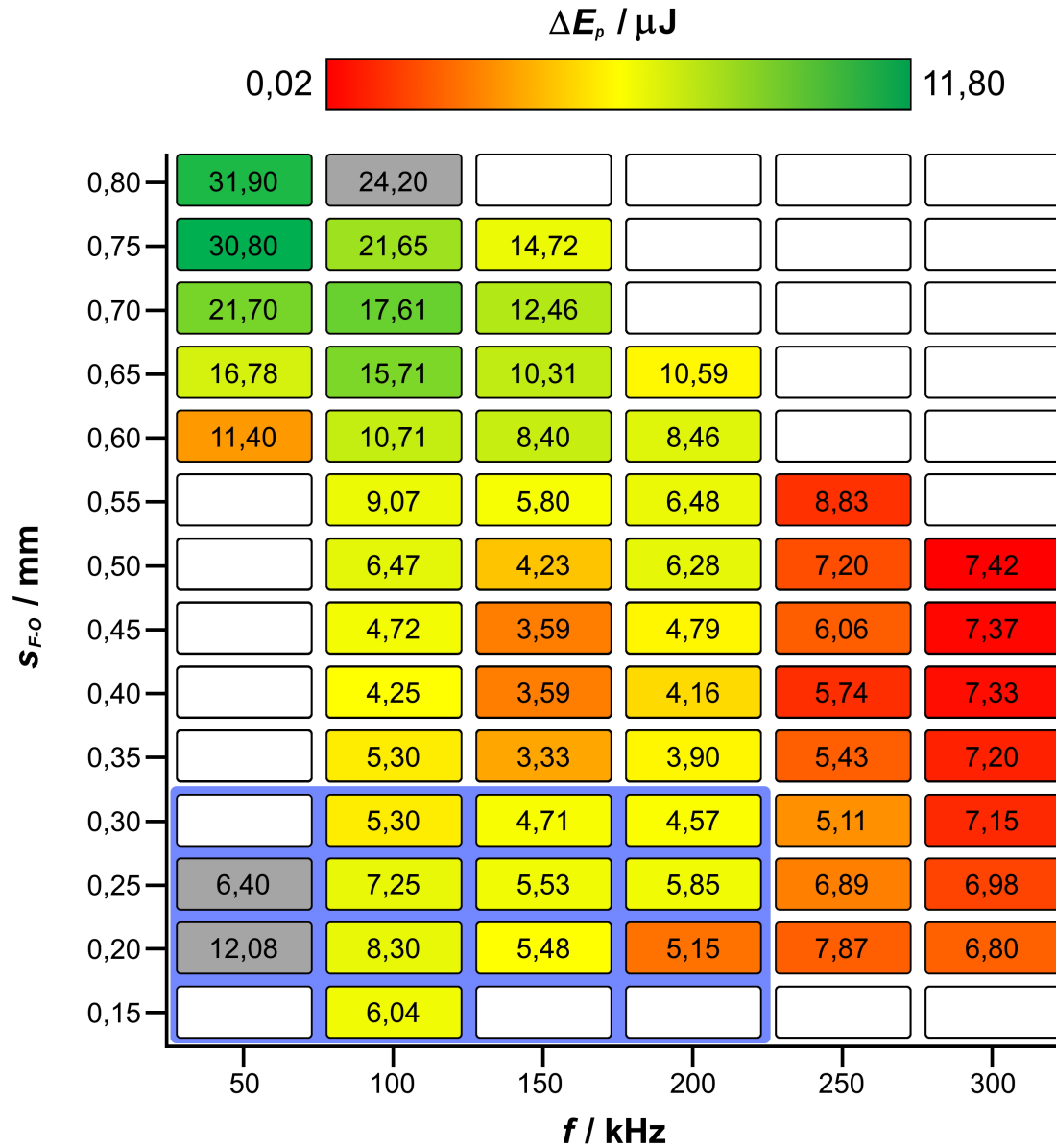
**Tab. 6.2:** Gemessene Strahlradien  $r$  und daraus berechnete Spotflächen  $A$  bei Abständen zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$  von -0,80 mm bis +0,80 mm.

$s_{F-O}$ / mm	$r$ / $\mu\text{m}$	$A$ / $10^6 \text{ cm}^2$	$s_{F-O}$ / mm	$r$ / $\mu\text{m}$	$A$ / $10^6 \text{ cm}^2$
-0,80	32,66	33,51	0,00	2,12	0,14
-0,75	28,83	26,11	0,05	1,93	0,12
-0,70	26,72	22,43	0,10	3,90	0,48
-0,65	22,32	15,64	0,15	4,59	0,66
-0,60	19,92	12,47	0,20	4,48	0,63
-0,55	15,36	7,41	0,25	4,51	0,64
-0,50	13,28	5,54	0,30	5,07	0,81
-0,45	11,01	3,80	0,35	6,14	1,18
-0,40	8,79	2,43	0,40	7,21	1,63
-0,35	7,58	1,80	0,45	7,45	1,74
-0,30	6,45	1,31	0,50	9,68	2,94
-0,25	6,24	1,22	0,55	12,59	4,98
-0,20	6,05	1,15	0,60	13,59	5,80
-0,15	4,74	0,71	0,65	14,53	6,63
-0,10	3,89	0,48	0,70	15,45	7,49
-0,05	2,17	0,15	0,75	18,47	10,71
0,00	2,12	0,14	0,80	19,52	11,97

**Tab. 6.3:** Anzahl überlappender Pulse  $N_p$  bei einer Schreibgeschwindigkeit  $v$  von 1 mm/s für Repetitionsraten  $f$  von 50 kHz bis 300 kHz und Abständen zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$  von -0,80 mm bis +0,80 mm.

$s_{F-O}$ / mm	$r$ / $\mu\text{m}$	Anzahl überlappender Pulse $N_p$					
		50 kHz	100 kHz	150 kHz	200 kHz	250 kHz	300 kHz
-0,80	32,66	3266	6532	9798	13064	16330	19596
-0,75	28,83	2883	5766	8649	11532	14415	17298
-0,70	26,72	2672	5344	8016	10688	13360	16032
-0,65	22,32	2232	4464	6696	8928	11160	13392
-0,60	19,92	1992	3984	5976	7968	9960	11952
-0,55	15,36	1536	3072	4608	6144	7680	9216
-0,50	13,28	1328	2656	3984	5312	6640	7968
-0,45	11,01	1101	2202	3303	4404	5505	6606
-0,40	8,79	879	1758	2637	3516	4395	5274
-0,35	7,58	758	1516	2274	3032	3790	4548
-0,30	6,45	645	1290	1935	2580	3225	3870
-0,25	6,24	624	1248	1872	2496	3120	3744
-0,20	6,05	605	1210	1815	2420	3025	3630
-0,15	4,74	474	948	1422	1896	2370	2844
-0,10	3,89	389	778	1167	1556	1945	2334
-0,05	2,17	217	434	651	868	1085	1302
0,00	2,12	212	424	636	848	1060	1272
0,05	1,93	390	780	1170	1560	1950	2340
0,15	4,59	459	918	1377	1836	2295	2754
0,20	4,48	448	896	1344	1792	2240	2688
0,25	4,51	451	902	1353	1804	2255	2706
0,30	5,07	507	1014	1521	2028	2535	3042
0,35	6,14	614	1228	1842	2456	3070	3684
0,40	7,21	721	1442	2163	2884	3605	4326
0,45	7,45	745	1490	2235	2980	3725	4470
0,50	9,68	968	1936	2904	3872	4840	5808
0,55	12,59	1259	2518	3777	5036	6295	7554
0,60	13,59	1359	2718	4077	5436	6795	8154
0,65	14,53	1453	2906	4359	5812	7265	8718
0,70	15,45	1545	3090	4635	6180	7725	9270
0,75	18,47	1847	3694	5541	7388	9235	11082
0,80	19,52	1952	3904	5856	7808	9760	11712





**Abb. 6.2:**  $E_p$ -Bereich in Abhängigkeit von  $s_{F-O}$  und  $f$ , in dem LIPSS erzeugt werden konnten. Die Werte in den Kästchen geben den Mittelwert der  $E_p$  in  $\mu\text{J}$  an, die farbliche Hervorhebung der Kästchen ist ein Maß für die Differenz  $\Delta E_p$  zwischen minimaler und maximaler  $E_p$ . Bei grau hervorgehobenen Kästchen wurde nur in wenigen Fällen eine LIPSS-Bildung beobachtet, weshalb die angegebenen Mittelwerte einer größeren Unsicherheit unterliegen könnten. Der blau hinterlegte Bereich hebt Parameterkombinationen hervor, bei denen eine LIPSS-Bildung in einem großen  $E_p$ -Bereich mit hohen  $\Delta E_p$  gelang.

**Tab. 6.4:** Minimale und maximale Pulsfluenzen  $F_p$  für die erfolgreiche Generierung von LIPSS bei Repetitionsraten  $f$  von 50 kHz bis 300 kHz und Abständen zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$  von 0,15 mm bis 0,80 mm.

$s_{F-O}$ / mm	$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 50 kHz		$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 100 kHz		$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 150 kHz	
	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	Max.
0,80	1,94	3,56	2,02	2,02	-	-
0,75	1,77	3,98	1,50	2,54	1,15	1,60
0,70	1,95	3,84	1,32	3,38	1,04	2,29
0,65	2,02	3,04	1,34	3,26	0,92	2,18
0,60	1,79	3,27	1,15	2,54	0,77	1,76
0,55	-	-	1,35	2,19	0,76	1,57
0,50	-	-	1,28	3,12	1,01	1,50
0,45	-	-	1,49	3,93	1,58	2,53
0,40	-	-	1,59	3,61	1,69	2,70
0,35	-	-	3,18	4,99	1,90	3,73
0,30	-	-	4,66	8,46	2,18	5,46
0,25	10,02	10,02	7,36	15,34	5,11	12,21
0,20	19,13	19,13	9,03	17,26	6,02	11,33
0,15	-	-	5,69	12,57	-	-

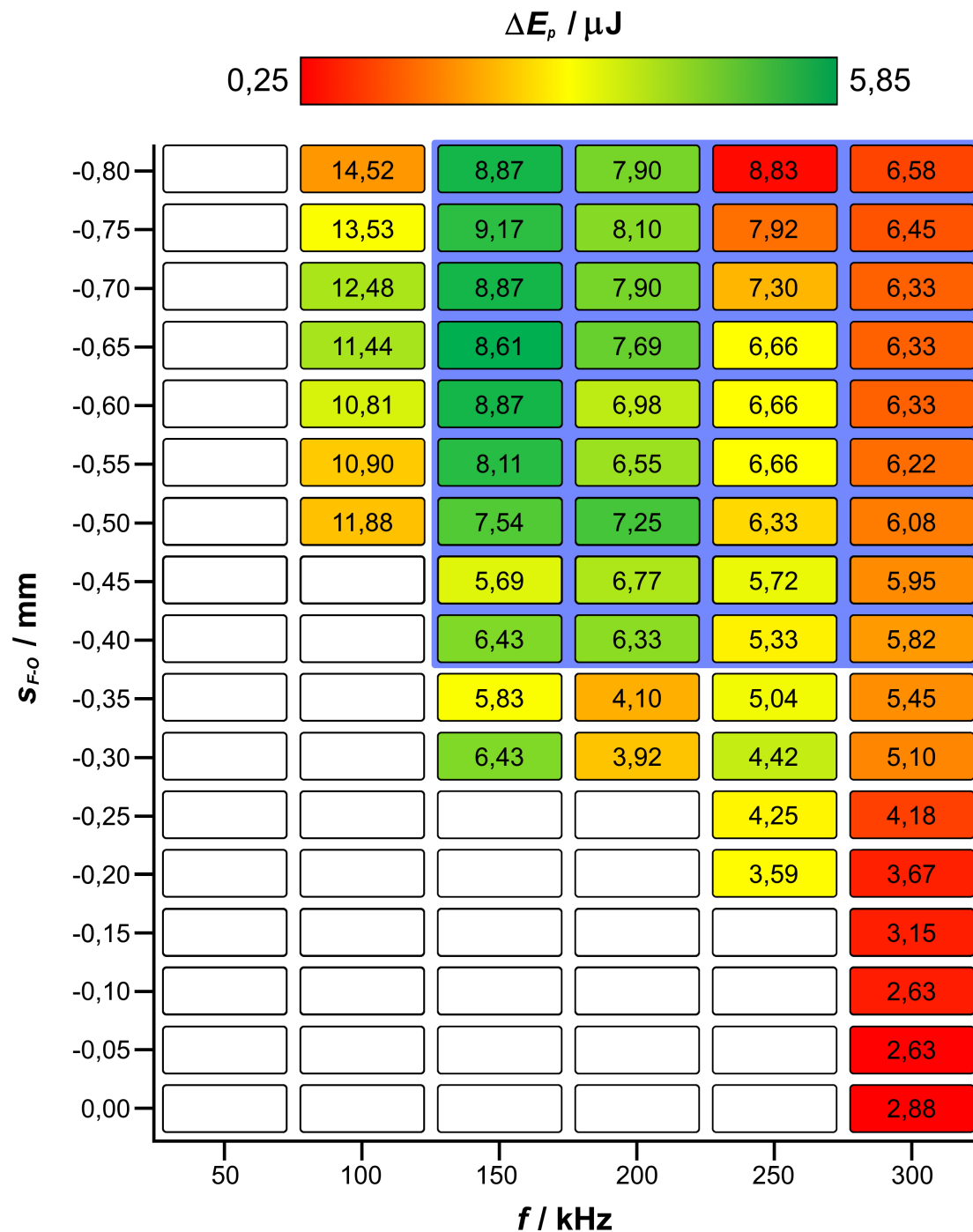
$s_{F-O}$ / mm	$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 200 kHz		$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 250 kHz		$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 300 kHz	
	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	Max.
0,80	-	-	-	-	-	-
0,75	-	-	-	-	-	-
0,70	-	-	-	-	-	-
0,65	1,35	1,84	-	-	-	-
0,60	0,95	1,97	-	-	-	-
0,55	0,80	1,80	1,71	1,84	-	-
0,50	1,22	2,75	2,27	2,63	2,52	2,53
0,45	1,82	3,67	3,12	3,83	4,19	4,27
0,40	1,68	3,41	3,33	3,71	4,43	4,55
0,35	1,94	4,65	4,06	5,12	5,89	6,28
0,30	3,39	7,91	5,15	7,49	8,49	9,20
0,25	5,63	12,66	9,48	12,08	10,22	11,63
0,20	6,97	9,34	11,47	13,45	9,77	11,77
0,15	-	-	-	-	-	-

**Tab. 6.5:** Minimale und maximale Pulsenergien  $E_p$  für die erfolgreiche Generierung von LIPSS bei Repetitionsraten  $f$  von 50 kHz bis 300 kHz und Abständen zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$  von 0,15 mm bis 0,80 mm.

$s_{F-O}$ / mm	$E_p$ / $\mu J$ 50 kHz		$E_p$ / $\mu J$ 100 kHz		$E_p$ / $\mu J$ 150 kHz	
	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	Max.
0,80	21,20	42,60	24,20	24,20	-	-
0,75	19,00	42,60	16,10	27,20	12,31	17,13
0,70	14,60	28,80	9,92	25,30	7,78	17,13
0,65	13,40	20,16	8,86	22,57	6,13	14,49
0,60	10,40	12,40	6,70	14,72	4,49	12,31
0,55	-	-	6,70	11,44	3,80	7,80
0,50	-	-	3,77	9,18	2,96	5,51
0,45	-	-	2,60	6,84	2,76	4,41
0,40	-	-	2,60	5,90	2,76	4,41
0,35	-	-	3,77	6,84	2,25	4,41
0,30	-	-	3,77	6,84	2,76	6,65
0,25	6,40	6,40	4,70	9,80	3,27	7,80
0,20	12,08	12,08	5,70	10,90	3,80	7,16
0,15	-	-	3,77	8,32	-	-

$s_{F-O}$ / mm	$E_p$ / $\mu J$ 200 kHz		$E_p$ / $\mu J$ 250 kHz		$E_p$ / $\mu J$ 300 kHz	
	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	Max.
0,80	-	-	-	-	-	-
0,75	-	-	-	-	-	-
0,70	-	-	-	-	-	-
0,65	8,98	12,20	-	-	-	-
0,60	5,50	11,42	-	-	-	-
0,55	4,00	8,95	8,49	9,16	-	-
0,50	3,60	8,95	6,68	7,72	7,40	7,43
0,45	3,18	6,39	5,43	6,68	7,30	7,43
0,40	2,74	5,57	5,43	6,06	7,23	7,43
0,35	2,30	5,50	4,80	6,06	6,97	7,43
0,30	2,74	6,39	4,16	6,06	6,87	7,43
0,25	3,60	8,09	6,06	7,72	6,53	7,43
0,20	4,40	5,90	7,24	8,49	6,17	7,43
0,15	-	-	-	-	-	-



**Abb. 6.3:**  $E_p$ -Bereich in Abhängigkeit von  $s_{F-O}$  und  $f$ , in dem SGW erzeugt werden konnten. Die Werte in den Kästchen geben den Mittelwert der  $E_p$  in  $\mu J$  an, die farbliche Hervorhebung der Kästchen ist ein Maß für die Differenz  $\Delta E_p$  zwischen minimaler und maximaler  $E_p$ . Der blau hinterlegte Bereich hebt Parameterkombinationen hervor, bei denen eine SGW-Bildung mit geringen Qualitätsschwankungen der SGW gelang.

**Tab. 6.6:** Minimale und maximale Pulsfluenzen  $F_p$  für die erfolgreiche Generierung von SGW bei Repetitionsraten  $f$  von 50 kHz bis 300 kHz und Abständen zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$  von 0,00 mm bis -0,80 mm.

$s_{F-O}$ / mm	$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 50 kHz		$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 100 kHz		$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 150 kHz	
	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	Max.
-0,80	-	-	0,39	0,48	0,10	0,43
-0,75	-	-	0,42	0,62	0,15	0,55
-0,70	-	-	0,40	0,72	0,15	0,64
-0,65	-	-	0,50	0,97	0,18	0,92
-0,60	-	-	0,62	1,11	0,26	1,16
-0,55	-	-	1,20	1,74	0,37	1,82
-0,50	-	-	1,79	2,50	0,50	2,22
-0,45	-	-	-	-	0,73	2,27
-0,40	-	-	-	-	0,93	4,37
-0,35	-	-	-	-	1,81	4,66
-0,30	-	-	-	-	1,72	8,11
-0,25	-	-	-	-	-	-
-0,20	-	-	-	-	-	-
-0,15	-	-	-	-	-	-
-0,10	-	-	-	-	-	-
-0,05	-	-	-	-	-	-
0,00	-	-	-	-	-	-

$s_{F-O}$ / mm	$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 200 kHz		$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 250 kHz		$F_p$ / J/cm <sup>2</sup> 300 kHz	
	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	Max.
-0,80	0,11	0,36	0,25	0,27	0,17	0,22
-0,75	0,15	0,47	0,26	0,35	0,21	0,28
-0,70	0,16	0,54	0,24	0,41	0,23	0,33
-0,65	0,20	0,78	0,27	0,59	0,33	0,48
-0,60	0,29	0,83	0,33	0,73	0,42	0,60
-0,55	0,37	1,40	0,56	1,24	0,67	1,00
-0,50	0,42	2,20	0,75	1,53	0,85	1,34
-0,45	0,84	2,72	0,77	2,23	1,17	1,95
-0,40	0,95	4,26	1,21	3,18	1,73	3,06
-0,35	1,28	3,27	1,31	4,28	2,18	3,86
-0,30	1,48	4,51	0,86	5,91	2,81	5,00
-0,25	-	-	1,49	5,46	2,75	4,08
-0,20	-	-	0,97	5,27	2,73	3,65
-0,15	-	-	-	-	3,73	5,20
-0,10	-	-	-	-	4,49	6,59
-0,05	-	-	-	-	16,00	19,60
0,00	-	-	-	-	18,65	22,19

**Tab. 6.7:** Minimale und maximale Pulsenergien  $E_p$  für die erfolgreiche Generierung von SGW bei Repetitionsraten  $f$  von 50 kHz bis 300 kHz und Abständen zwischen Fokus und Probenoberfläche  $s_{F-O}$  von 0,00 mm bis -0,80 mm.

$s_{F-O}$ / mm	$E_p / \mu J$ 50 kHz		$E_p / \mu J$ 100 kHz		$E_p / \mu J$ 150 kHz	
	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	Max.
-0,80	-	-	12,93	16,10	3,27	14,47
-0,75	-	-	10,96	16,10	3,88	14,47
-0,70	-	-	8,86	16,10	3,27	14,47
-0,65	-	-	7,78	15,10	2,76	14,47
-0,60	-	-	7,78	13,83	3,27	14,47
-0,55	-	-	8,86	12,93	2,76	13,47
-0,50	-	-	9,92	13,83	2,76	12,31
-0,45	-	-	-	-	2,76	8,63
-0,40	-	-	-	-	2,25	10,60
-0,35	-	-	-	-	3,27	8,40
-0,30	-	-	-	-	2,25	10,60
-0,25	-	-	-	-	-	-
-0,20	-	-	-	-	-	-
-0,15	-	-	-	-	-	-
-0,10	-	-	-	-	-	-
-0,05	-	-	-	-	-	-
0,00	-	-	-	-	-	-

$s_{F-O}$ / mm	$E_p / \mu J$ 200 kHz		$E_p / \mu J$ 250 kHz		$E_p / \mu J$ 300 kHz	
	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	Max.
-0,80	3,60	12,20	8,49	9,16	5,73	7,43
-0,75	4,00	12,20	6,68	9,16	5,47	7,43
-0,70	3,60	12,20	5,43	9,16	5,23	7,43
-0,65	3,18	12,20	4,16	9,16	5,23	7,43
-0,60	3,60	10,35	4,16	9,16	5,23	7,43
-0,55	2,74	10,35	4,16	9,16	5,00	7,43
-0,50	2,30	12,20	4,16	8,49	4,73	7,43
-0,45	3,18	10,35	2,94	8,49	4,47	7,43
-0,40	2,30	10,35	2,94	7,72	4,20	7,43
-0,35	2,30	5,90	2,37	7,72	3,93	6,97
-0,30	1,94	5,90	1,12	7,72	3,67	6,53
-0,25	-	-	1,83	6,68	3,37	5,00
-0,20	-	-	1,12	6,06	3,13	4,20
-0,15	-	-	-	-	2,63	3,67
-0,10	-	-	-	-	2,13	3,13
-0,05	-	-	-	-	2,37	2,90
0,00	-	-	-	-	2,63	3,13

## Danksagung

Eine Dissertation ohne Hilfe zu schreiben ist unmöglich. Deshalb möchte ich an dieser Stelle allen Freunden, Familienmitgliedern und Kollegen danken, die mir bei dieser Arbeit beiseite gestanden haben.

Zunächst einmal gilt mein Dank Herrn Prof. Dr. Hampp, der es mir ermöglicht hat meine Promotion in seiner Arbeitsgruppe anzufertigen. Neben der Arbeit gab es auch immer wieder informelle Zusammenkünfte der Arbeitsgruppe für die ich mich besonders bedanken möchte.

Weiterhin möchte ich Herr Prof. Dr. Tallarek für die Übernahme des Zweitgutachtens und Prof. Dr. Geyer als drittes Mitglied der Prüfungskommission danken.

Ein großes Dankeschön geht an meine Kollegen, mit denen ich viel Spaß hatte und die ich nach dieser Zeit zurecht meine Freunde nennen kann.

Besonders erwähnen will ich an dieser Stelle *The Hampps*, die kleine Gruppe meiner Bürokollegen Michael Dasbach, Sebastien Durbach, Philipp Nürnberger und Hendrik Reinhardt. Mit euch gab es regelmäßig interessante „Brainstormings“, bei denen nicht nur akademische Themen diskutiert wurden.

In diesem Sinne möchte ich auch meinen Vertiefern und Bachelorstudenten danken, allen voran Ziria Herdegen, deren Mithilfe ein großer Zugewinn für diese Arbeit war.

Meiner Familie, meiner Frau Sandra Pfeifer und meinem Freund Fabian Daus möchte ich für die großartige Unterstützung während meines Studiums und der Promotion danken. Ohne euren Beitrag wäre diese Promotion nicht möglich gewesen.

# Erklärung zur vorliegenden Dissertation

Ich erkläre, dass eine Promotion noch an keiner anderen Hochschule als der Philipps-Universität Marburg, Fachbereich Chemie, versucht wurde.

Ich versichere, dass ich meine vorgelegte Dissertation mit dem Titel:

*Wechselwirkung und Zusammenhang der zugrundeliegenden Mechanismen von LIPSS und optischer Pinzette*

selbst und ohne fremde Hilfe verfasst, nicht andere als die in ihr angegebenen Quellen oder Hilfsmittel benutzt, alle vollständig oder sinngemäß übernommenen Zitate als solche gekennzeichnet, sowie die Dissertation in der vorliegenden oder einer ähnlichen Form noch bei keiner anderen in- oder ausländischen Hochschule anlässlich eines Promotionsgesuchs oder zu anderen Prüfungszwecken eingereicht habe.

---

Ort, Datum

---

Erik Pfeifer





# Wissenschaftlicher Werdegang

## Persönliche Daten

Erik Pfeifer

geboren am 04.02.1990 in Haldensleben

## Ausbildung

10/2016 - 07/2020

Promotionsstudium am Fachbereich Chemie der Philipps-Universität Marburg bei  
Herrn Prof. Dr. N. Hampp

Titel der Dissertation:

*Wechselwirkung und Zusammenhang der zugrundeliegenden Mechanismen von LIPSS  
und optischer Pinzette*

Abschluss: **Doctor rerum naturalium (1,6)**

08/2013 - 09/2016

Masterstudiengang Chemie der Philipps-Universität Marburg

Titel der Masterarbeit:

*Elektrochemische Deposition von Goldpartikeln auf laserstrukturierten Elektroden*

Abschluss: **Master of Science (1,8)**

10/2009 - 07/2013

Bachelorstudiengang Chemie der Philipps-Universität Marburg

Titel der Bachelorarbeit:

*Synthesis and characterization of tantalum pentoxide hollow nanospheres by use  
of a sacrificial carbonaceous template*

Abschluss: **Bachelor of Science (2,4)**



# Abkürzungs- und Symbolverzeichnis

Abkürzung	Definition
AFM	atomic force microscopy bzw. microscope
A-LIPSS	attraktive LIPSS
Au	Gold
BSE	back-scattered electrons
CW	continous wave
DPSS	diode pumped solid state
FDTD	finite-difference time-domain
FEM	frequency-domain finite-element method
HCl	Salzsäure
HNO <sub>3</sub>	Salpetersäure
HSFL	high spatial frequency LIPSS
LCoS	liquid crystal on silicon
LIPSS	laser-induced periodic surface structures
LSFL	low spatial frequency LIPSS
LSP	localized surface plasmons
NA	numerische Apertur
Nd:YVO <sub>4</sub>	Neodym:Yttriumvanadat
OBF	optical binding force
OM	optische Manipulation
OT	optical tweezer bzw. trap
PE-OT	plasmon enhanced optical tweezer
R-LIPSS	repulsive LIPSS
SE	secondary electrons
SEM	scanning electron microscopy bzw. microscope
SEW	surface-scattered electromagnetic waves
SGW	single gold wires
Si	Silicium
SiO <sub>2</sub>	Siliciumdioxid
SLM	spatial light modulator
SPP	surface plasmon polariton
TL	thermische Linse

Symbol	Definition
$\alpha$	Öffnungswinkel des SLM
$\delta_d$	Eindringtiefe der SPP ins Dielektrikum
$\delta_m$	Eindringtiefe der SPP ins Metall
$\eta$	efficacy factor
$\lambda$	Wellenlänge
$\Lambda$	LIPSS-Periodizität
$\Lambda_{\text{HSFL}}$	Periodizität von HSFL
$\Lambda_{\text{LSFL}}$	Periodizität von LSFL
$\omega$	Kreisfrequenz
$\tilde{\omega}$	Wellenvektor
$\pi$	Kreiszahl
$\theta$	Einfallswinkel des Lichts
$s_{\text{F-O}}$	Abstand zwischen Fokus und Probenoberfläche
$a$	Periodizität eines Gitters
$A$	Fläche
$a_{1/2}$	halbe numerische Apertur
$b(k)$	Maß für die Oberflächenrauigkeit
$b_{\text{HSFL}}$	Breite der HSFL
$d$	Durchmesser bzw. Breite
$E_p$	Pulsenergie
$f$	Repetitionsrate
$f_{\text{tip}}$	Resonanzfrequenz der AFM-Spitze
$F_{\text{gr}}$	gradient force
$f_L$	Brennweite einer Linse
$F_p$	Pulsfluenz
$F_{\text{ph-}}$	Kraft der negativen Phototphorese
$F_{\text{ph+}}$	Kraft der positiven Phototphorese
$F_{\text{real}}$	realer Fokus des Lasersystems
$F_{\text{sc}}$	scattering force
$F_{\text{th}}$	Kraft der Thermophorese
$F_{\text{TL}}$	zweiter Fokus durch thermische Linse
$g$	Reziproker Gittervektor
$k$	Wellenzahl
$k_i$	Wellenvektor des einfallenden Lichts
$k_L$	Wellenzahl des Lichts
$k_{\text{SPP}}$	Wellenzahl der SPP
$k_{\text{tip}}$	Federkonstante der AFM-Spitze
$k_{\pm}$	Streuvektor des Wellenvektors
$\Delta k$	Impulsunterschied
$l_{\text{self}}$	selfedge-Region

Symbol	Definition
$n_i$	Beugungsordnung
$n$	Brechungsindex
$n_{\text{heiß}}$	Brechungsindex heißer Luft
$n_{\text{kühl}}$	Brechungsindex kühler Luft
$n_M$	Brechungsindex des Mediums
$n_P$	Brechungsindex des Partikels
$N_P$	Pulsüberlappung; Anzahl überlappender Pulse
$N_P^*$	Anzahl einfallender Pulse
$n_{\text{plasma}}$	Brechungsindex des Plasmas
$P$	Leistung
$r$	Radius
$R$	ohmscher Widerstand
$T$	Temperatur
$t$	Zeit
$t_{\text{HSFL}}$	Tiefe der HSFL
$v$	Geschwindigkeit



# Abbildungsverzeichnis

2.1	Periodische Muster auf einer Germaniumoberfläche durch Bestrahlung mit Rubinlaser. . . . .	4
2.2	Schematische Darstellung der LIPSS-Bildung nach der surface scattered wave-Theorie von Emmony. . . . .	5
2.3	Schematische Darstellung der LIPSS-Bildung nach der efficacy factor-Theorie von Sipe. . . . .	7
2.4	Feldlinien der SPP an der Grenzschicht Metall/Dielektrikum sowie die z- und x-Komponente des elektrischen Feldes der SPP. . . . .	9
2.5	Dispersionsrelationen von Licht und SPP bei unterschiedlichen Oberflächenbeschaffenheiten. . . . .	10
2.6	LIPSS-modifizierte Messingoberfläche. . . . .	14
2.7	Schematischer Versuchsaufbau der ersten 3-dimensionalen optischen Pinzette von Ashkin. . . . .	18
2.8	Gradientenkraft bei transparenten Partikeln mit unterschiedlichen Brechungsindices. . . . .	19
2.9	Gradienten- und Streukraft einer stabilen, 3-dimensionalen optischen Pinzette. . . . .	21
2.10	3D FDTD-Berechnung des SPP-verstärkten elektrischen Feldes um einen Goldpartikel. . . . .	24
2.11	Beispiel eines bottle beams zum Einfangen einzelner Partikel. . . . .	25
2.12	Anwendung eines Vortex-Strahls zum Einfangen und zur Rotation von Silbernanostäbchen. . . . .	26



2.13	Schematische Darstellung der positiven und negativen Photophorese.	28
2.14	Schematische Darstellung der wirkenden thermophoretischen Kraft durch einen Temperaturgradienten im Medium um einen Partikel.	29
3.1	Schematische Darstellung des verwendeten Lasersystems. . . . .	32
3.2	Auftragung des Abstands zwischen Fokus und Probenoberfläche $s_{F-O}$ gegen den gemessenen Strahlradius $r$ . . . . .	35
4.1	Übersicht der erhaltenen Ergebnisse. . . . .	39
4.2	$F_p$ -Bereich in Abhängigkeit von $s_{F-O}$ und $f$ , in dem LIPSS erzeugt werden konnten. . . . .	42
4.3	Generierte LIPSS bei Variation der Parameter $s_{F-O}$ und $f$ . . . . .	44
4.4	Effekt einer thermischen Linse auf die Erzeugung von LIPSS bei unterschiedlichen $s_{F-O}$ . . . . .	47
4.5	Erhaltene LIPSS-Orientierungen bei unterschiedlichen Polarisationen.	48
4.6	LIPSS-Linien mit unterschiedlichen Kurvenradien bei schreibrichtungsabhängiger Polarisationsdrehung. . . . .	50
4.7	Einfluss der Schreibrichtung auf die LIPSS-Orientierung. . . . .	52
4.8	Schematische Darstellung des am LCoS angezeigten Bildes und der daraus erwarteten LIPSS-Orientierung. . . . .	53
4.9	Erzeugte LIPSS-Linien und -Punkte unter der Verwendung komplexer Polarisationsbilder. . . . .	54
4.10	$F_p$ -Bereich in Abhängigkeit von $s_{F-O}$ und $f$ , in dem SGW erzeugt werden konnten. . . . .	58
4.11	Pulsüberlappung $N_p$ in Abhängigkeit von $s_{F-O}$ und $f$ , in dem SGW erzeugt werden konnten. . . . .	60
4.12	Generierte SGW bei Variation der Parameter $s_{F-O}$ , $f$ und $v$ . . . . .	62
4.13	AFM-Aufnahmen der SGW nach dem Waschen mit Königswasser.	64
4.14	Effekt einer thermischen Linse auf die Erzeugung von SGW bei unterschiedlichen $s_{F-O}$ . . . . .	66

4.15	Veränderter Intensitätsgradient durch den Einfluss einer thermischen Linse. . . . .	67
4.16	SGW-Spiralen unterschiedlicher Größe und Schreibrichtung. . . .	69
4.17	SGW-Vierecke mit abgerundeten Ecken. . . . .	70
4.18	Goldansammlung vor und nach dem Waschen mit Königswasser. .	72
4.19	Aus Punkt-Belaserungen erhaltene Goldansammlungen und -ringe.	74
4.20	Nachträgliche Bestrahlung einer Goldansammlung. . . . .	77
4.21	Leichte Beeinflussung der LIPSS durch eine optische Pinzette. . .	80
4.22	Starke Beeinflussung der LIPSS durch eine optische Pinzette. Bildung von A- und R-LIPSS. . . . .	81
4.23	Bildung von Goldringen als Punktvariante von A- und R-LIPSS. .	83
4.24	Schematische Übersicht der parametrischen Zusammenhänge von LIPSS, R-LIPSS, A-LIPSS und SGW. . . . .	84
4.25	Grenzstrukturen mit Merkmalen von LIPSS, SGW, A-LIPSS und R-LIPSS. . . . .	86
4.26	Mehrreihige Partikelanordnung durch optical binding force. . . .	88
6.1	Graphische Auftragung der gemessenen Laserleistung $P$ auf der Probenoberfläche. . . . .	97
6.2	$E_p$ -Bereich in Abhängigkeit von $s_{F-O}$ und $f$ , in dem LIPSS erzeugt werden konnten. . . . .	100
6.3	$E_p$ -Bereich in Abhängigkeit von $s_{F-O}$ und $f$ , in dem SGW erzeugt werden konnten. . . . .	103



# Tabellenverzeichnis

6.1	Gemessene Laserleistung $P$ auf der Probenoberfläche. . . . .	96
6.2	Strahlradien $r$ und Spotflächen $A$ in Abhängigkeit vom Abstand zwischen Fokus und Probenoberfläche $s_{F-O}$ . . . . .	98
6.3	Anzahl überlappender Pulse $N_p$ bei einer Schreibgeschwindigkeit $v$ von 1 mm/s. . . . .	99
6.4	Minimale und maximale Pulsfluenzen $F_p$ für die erfolgreiche Gener- ierung von LIPSS. . . . .	101
6.5	Minimale und maximale Pulsenergien $E_p$ für die erfolgreiche Gener- ierung von LIPSS. . . . .	102
6.6	Minimale und maximale Pulsfluenzen $F_p$ für die erfolgreiche Gener- ierung von SGW. . . . .	104
6.7	Minimale und maximale Pulsenergien $E_p$ für die erfolgreiche Gener- ierung von SGW. . . . .	105



## 7 Literatur

- [1] T. H. Maiman, *Nature* **1960**, *187*, 493–494.
- [2] T. G. Helmut Hügel, *Laser in der Fertigung*, Vieweg+Teubner Verlag, **2014**.
- [3] P. M. Winter *et al.* in *Encyclopedia of Nanotechnology*, Springer Netherlands, **2012**, 2051–2060.
- [4] J. Shan, C. K. Toth, *Topographic Laser Ranging and Scanning*, Taylor & Francis Inc, **2018**, 638 S.
- [5] V. Zorba *et al.*, *Applied Physics A* **2008**, *93*, 819–825.
- [6] M. Birnbaum, *Journal of Applied Physics* **1965**, *36*, 3688–3689.
- [7] J. E. Sipe *et al.*, *Physical Review B* **1983**, *27*, 1141–1154.
- [8] A. Ashkin, *Physical Review Letters* **1970**, *24*, 156–159.
- [9] A. Ashkin, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **2000**, *6*, 841–856.
- [10] D. C. Emmony, R. P. Howson, L. J. Willis, *Applied Physics Letters* **1973**, *23*, 598–600.
- [11] F. Keilmann, Y. H. Bai, *Applied Physics A Solids and Surfaces* **1982**, *29*, 9–18.
- [12] J. F. Young *et al.*, *Physical Review B* **1983**, *27*, 1155–1172.
- [13] J. F. Young, J. E. Sipe, H. M. van Driel, *Physical Review B* **1984**, *30*, 2001–2015.

- [14] P. Drude, *Annalen der Physik* **1900**, *306*, 566–613.
- [15] J. Bonse, A. Rosenfeld, J. Krüger, *Journal of Applied Physics* **2009**, *106*, 104910.
- [16] J. Z. P. Skolski *et al.*, *Physical Review B* **2012**, *85*, 075320.
- [17] M. Huang *et al.*, *ACS Nano* **2009**, *3*, 4062–4070.
- [18] M. Huang *et al.*, *Annalen der Physik* **2012**, *525*, 74–86.
- [19] J. Bonse *et al.*, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **2017**, *23*, 9000615.
- [20] S. A. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications*, Springer-Verlag GmbH, **2007**.
- [21] W. L. Barnes, A. Dereux, T. W. Ebbesen, *Nature* **2003**, *424*, 824–830.
- [22] H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings*, Springer-Verlag GmbH, **1988**.
- [23] D. Bäuerle, *Laser Processing and Chemistry*, Springer-Verlag GmbH, **2011**.
- [24] J. Bonse, A. Rosenfeld, J. Krüger, *Applied Surface Science* **2011**, *257*, 5420–5423.
- [25] J. S. Preston *et al.*, *Physical Review B* **1989**, *40*, 3931–3941.
- [26] E. L. Gurevich, *Applied Surface Science* **2016**, *374*, 56–60.
- [27] E. Rebollar *et al.*, *Physical Chemistry Chemical Physics* **2013**, *15*, 11287–11298.
- [28] O. Varlamova *et al.*, *Applied Physics A* **2017**, *123*, 725.
- [29] J. Reif *et al.*, *Applied Physics A* **2011**, *104*, 969–973.
- [30] A. M. Ozkan *et al.*, *Applied Physics Letters* **1999**, *75*, 3716–3718.
- [31] J. Reif *et al.*, *Applied Surface Science* **2002**, *197-198*, 891–895.
- [32] I. Martín-Fabiani *et al.*, *Langmuir* **2012**, *28*, 7938–7945.

- [33] H. Reinhardt *et al.*, *Advanced Materials* **2013**, *25*, 3313–3318.
- [34] P. Nürnberger *et al.*, *Journal of Applied Physics* **2015**, *118*, 134306.
- [35] Y. Hu *et al.*, *Applied Physics A* **2016**, *122*, 665.
- [36] P. Nürnberger *et al.*, *Applied Surface Science* **2017**, *425*, 682–688.
- [37] A. M. Bonch-Bruевич, *Optical Engineering* **1992**, *31*, 718.
- [38] J. Polo, A. Lakhtakia, *Laser & Photonics Reviews* **2011**, *5*, 234–246.
- [39] T. Tomita *et al.*, *Applied Physics A* **2009**, *97*, 271–276.
- [40] X.-F. Li *et al.*, *Optics Express* **2014**, *22*, 28086–28099.
- [41] X. Sedao *et al.*, *ACS Nano* **2016**, *10*, 6995–7007.
- [42] B. Öktem *et al.*, *Nature Photonics* **2013**, *7*, 897–901.
- [43] H. Reinhardt *et al.*, *The Journal of Physical Chemistry C* **2015**, *119*, 5462–5466.
- [44] C. Kunz *et al.*, *Carbon* **2018**, *133*, 176–185.
- [45] G. Mincuzzi *et al.*, *Applied Surface Science* **2016**, *386*, 65–71.
- [46] J. Yang *et al.*, *Procedia Engineering* **2017**, *183*, 363–368.
- [47] R. Torres *et al.*, *AIP Conference Proceedings* **2010**, *1278*, 576–581.
- [48] A. Mizuno *et al.*, *Tribology Online* **2006**, *1*, 44–48.
- [49] N. Yasumaru *et al.*, *Diamond and Related Materials* **2011**, *20*, 542–545.
- [50] M. Akram *et al.*, *Optical Materials Express* **2019**, *9*, 3183–3192.
- [51] A. F. Sartori *et al.*, *ACS Applied Materials & Interfaces* **2018**, *10*, 43236–43251.
- [52] S. Hamad *et al.*, *ACS Omega* **2018**, *3*, 18420–18432.
- [53] J. Kepler, *De Cometis Libelli Tres*, **1619**.
- [54] J. C. Maxwell, *A Treatise on Electricity and Magnetism*, Bd. 2, 3. Aufl., Dover Publications, New York, **1891**.



- [55] E. F. Nichols, G. F. Hull, *Annalen der Physik* **1903**, *317*, 225–263.
- [56] P. Lebedew, *Annalen der Physik* **1901**, *311*, 433–458.
- [57] A. Ashkin, J. M. Dziedzic, *Applied Physics Letters* **1974**, *24*, 586–588.
- [58] A. Ashkin, J. M. Dziedzic, *Applied Physics Letters* **1977**, *30*, 202–204.
- [59] A. Ashkin, *Science* **1980**, *210*, 1081–1088.
- [60] R. Schieder, H. Walther, L. Wöste, *Optics Communications* **1972**, *5*, 337–340.
- [61] A. F. Bernhardt, *Applied Physics* **1976**, *9*, 19–34.
- [62] T. Hänsch, A. Schawlow, *Optics Communications* **1975**, *13*, 68–69.
- [63] A. Ashkin, J. P. Gordon, *Optics Letters* **1979**, *4*, 161–163.
- [64] W. D. Phillips, H. Metcalf, *Physical Review Letters* **1982**, *48*, 596–599.
- [65] J. Prodan *et al.*, *Physical Review Letters* **1985**, *54*, 992–995.
- [66] S. Chu *et al.*, *Physical Review Letters* **1985**, *55*, 48–51.
- [67] A. Ashkin, *Physical Review Letters* **1978**, *40*, 729–732.
- [68] K. Svoboda, S. M. Block, *Optics Letters* **1994**, *19*, 930–932.
- [69] Y. Seol, A. E. Carpenter, T. T. Perkins, *Optics Letters* **2006**, *31*, 2429–2431.
- [70] J.-Q. Qin *et al.*, *Optics Express* **2009**, *17*, 8407–8416.
- [71] M. Dienerowitz, *Journal of Nanophotonics* **2008**, *2*, 021875.
- [72] V. Giniš *et al.*, *Physical Review Letters* **2013**, *110*, 057401.
- [73] C. Cecconi, *Science* **2005**, *309*, 2057–2060.
- [74] L. B. Oddershede, *Nature Chemical Biology* **2012**, *8*, 879–886.
- [75] L. P. Ghislain, W. W. Webb, *Optics Letters* **1993**, *18*, 1678–1680.
- [76] A. D. Dinsmore, A. G. Yodh, D. J. Pine, *Nature* **1996**, *383*, 239–242.

- [77] F. Pierini *et al.*, *Measurement Science and Technology* **2016**, *27*, 025904.
- [78] A. Ohlinger *et al.*, *Physical Review Letters* **2012**, *108*, 018101.
- [79] D. Gao *et al.*, *Light: Science & Applications* **2017**, *6*, e17039–e17039.
- [80] A. Usman, W.-Y. Chiang, H. Masuhara, *Science Progress* **2013**, *96*, 1–18.
- [81] Y. Liu, X. Zhang, *Nanoscale* **2012**, *4*, 5277–5292.
- [82] M. L. Juan, M. Righini, R. Quidant, *Nature Photonics* **2011**, *5*, 349–356.
- [83] G. Volpe *et al.*, *Physical Review Letters* **2006**, *96*, 238101.
- [84] K. Wang, E. Schonbrun, K. B. Crozier, *Nano Letters* **2009**, *9*, 2623–2629.
- [85] J. Plewa *et al.*, *Optics Express* **2004**, *12*, 1978–1981.
- [86] D. G. Grier, Y. Roichman, *Applied Optics* **2006**, *45*, 880–887.
- [87] X. Hou, D. Gao, L. Gao, *AIP Advances* **2019**, *9*, 035154.
- [88] S.-H. Lee, Y. Roichman, D. G. Grier, *Optics Express* **2010**, *18*, 6988–6993.
- [89] M. V. Berry, N. L. Balazs, *American Journal of Physics* **1979**, *47*, 264–267.
- [90] J. Baumgartl, M. Mazilu, K. Dholakia, *Nature Photonics* **2008**, *2*, 675–678.
- [91] A. Novitsky, C.-W. Qiu, H. Wang, *Physical Review Letters* **2011**, *107*, 203601.
- [92] A. Novitsky, C.-W. Qiu, A. Lavrinenko, *Physical Review Letters* **2012**, *109*, 023902.
- [93] P. Zhang *et al.*, *Optics Letters* **2011**, *36*, 1491–1493.
- [94] J. Wu, X. Tang, J. Xia, *Nanomaterials* **2019**, *9*, 87.
- [95] V. G. Shvedov *et al.*, *Physical Review Letters* **2010**, *105*, 118103.
- [96] V. Garcés-Chávez *et al.*, *Physical Review B* **2006**, *73*, 085417.
- [97] V. Garcés-Chávez *et al.*, *Nature* **2002**, *419*, 145–147.
- [98] O. Brzobohatý *et al.*, *Nature Photonics* **2013**, *7*, 123–127.

- [99] Z. Yan, N. F. Scherer, *The Journal of Physical Chemistry Letters* **2013**, *4*, 2937–2942.
- [100] O. Jovanovic, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **2009**, *110*, 889–901.
- [101] C. Y. Soong *et al.*, *Optics Express* **2010**, *18*, 2168–2182.
- [102] H. Horvath, *KONA Powder and Particle Journal* **2014**, *31*, 181–199.
- [103] C. Loesche, T. Husmann, *Journal of Aerosol Science* **2016**, *102*, 55–71.
- [104] J. Giddings, P. M. Shinudu, S. N. Semenov, *Journal of Colloid and Interface Science* **1995**, *176*, 454–458.
- [105] R. Piazza, *Soft Matter* **2008**, *4*, 1740–1744.
- [106] G. Wurm, O. Krauss, *Physical Review Letters* **2006**, *96*, 134301.
- [107] G. Wurm, O. Krauss, *Atmospheric Environment* **2008**, *42*, 2682–2690.
- [108] A. Rubinowicz, *Annalen der Physik* **1920**, *367*, 691–715.
- [109] B. Redding *et al.*, *Optics Express* **2015**, *23*, 3630–3639.
- [110] J. Chen *et al.*, *Scientific Reports* **2016**, *6*, 35814.
- [111] S. Gräf *et al.*, *Materials* **2018**, *11*, 1340.
- [112] T. Kobayashi *et al.*, *Precision Engineering* **2019**, *57*, 244–252.
- [113] M. Mahdieh, M. A. Jafarabadi, *Optics & Laser Technology* **2012**, *44*, 78–82.
- [114] K. Dobek *et al.*, *Applied Physics B* **2016**, *122*, 151.
- [115] L. B. D. Silva *et al.*, *Physical Review Letters* **1995**, *74*, 3991–3994.
- [116] J. Nilsen, J. H. Scofield, *Optics Letters* **2004**, *29*, 2677–2679.
- [117] J. Bonse *et al.*, *Journal of Laser Applications* **2012**, *24*, 042006.
- [118] D. Wang, P. Schaaf, *Journal of Materials Science* **2011**, *47*, 1605–1608.
- [119] M. Dasbach, H. M. Reinhardt, N. A. Hampp, *Nanomaterials* **2019**, *9*, 1031.

- [120] L. Rayleigh, *The London Edinburgh and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* **1892**, *34*, 145–154.
- [121] A. Hiraki, M.-A. Nicolet, J. W. Mayer, *Applied Physics Letters* **1971**, *18*, 178–181.
- [122] Y. M. Shao *et al.*, *Applied Physics Letters* **2012**, *101*, 053104.
- [123] A. A. Ambardekar, Y.-q. Li, *Optics Letters* **2005**, *30*, 1797–1799.
- [124] M. Righini *et al.*, *Physical Review Letters* **2008**, *100*, 186804.
- [125] U. Quentin *et al.*, *Journal of Laser Applications* **2012**, *24*, 042003.
- [126] R. Vaippully *et al.*, *Physica Scripta* **2019**, *94*, 105008.
- [127] M. M. Burns, J.-M. Fournier, J. A. Golovchenko, *Physical Review Letters* **1989**, *63*, 1233–1236.
- [128] F. Dapasse, J.-M. Vigoureux, *Journal of Physics D: Applied Physics* **1994**, *27*, 914–919.
- [129] T. M. Grzegorzcyk, B. A. Kemp, J. A. Kong, *Physical Review Letters* **2006**, *96*, 113903.
- [130] Z. Yan *et al.*, *ACS Nano* **2013**, *7*, 1790–1802.
- [131] Z. Yan *et al.*, *The Journal of Physical Chemistry Letters* **2013**, *4*, 2630–2636.
- [132] V. Demergis, E.-L. Florin, *Nano Letters* **2012**, *12*, 5756–5760.
- [133] X. He *et al.*, *Scientific Reports* **2016**, *6*, 35035.
- [134] W. Nam, J. I. Mitchell, X. Xu, *Nanotechnology* **2016**, *27*, 485205.